

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-335776

(P2001-335776A)

(43)公開日 平成13年12月4日(2001.12.4)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード*(参考)	
C 0 9 K 11/06	6 0 2	C 0 9 K 11/06	6 0 2	3 K 0 0 7
	6 3 0		6 3 0	4 C 0 7 2
	6 5 0		6 5 0	4 H 0 4 9
	6 5 5		6 5 5	4 J 1 0 0
C 0 7 D 519/00		C 0 7 D 519/00		
審査請求 未請求 請求項の数16 O L (全 52 頁) 最終頁に続く				

(21)出願番号	特願2000-218967(P2000-218967)	(71)出願人	000005201 富士写真フイルム株式会社 神奈川県南足柄市中沼210番地
(22)出願日	平成12年7月19日(2000.7.19)	(72)発明者	岡田 久 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内
(31)優先権主張番号	特願平11-207957	(72)発明者	伊勢 俊大 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内
(32)優先日	平成11年7月22日(1999.7.22)	(74)代理人	100105647 弁理士 小栗 昌平 (外4名)
(33)優先権主張国	日本 (J P)		
(31)優先権主張番号	特願2000-80734(P2000-80734)		
(32)優先日	平成12年3月22日(2000.3.22)		
(33)優先権主張国	日本 (J P)		
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 新規ヘテロ環化合物、発光素子材料およびそれを使用した発光素子

(57)【要約】

【課題】色純度に優れ、且つ発光特性が良好であり、また繰返し使用時での安定性に優れた発光素子材料および発光素子を提供する。

【解決手段】下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料、及びこれを用いた発光素子。

一般式(I)

$L-(A)_m$

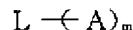
(式中、Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異ってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式（I）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化1】

## 一般式（I）

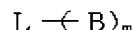


（式中、Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項2】 下記一般式（II）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化2】

## 一般式（II）

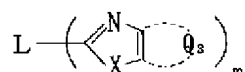


（式中、Bは二つ以上の5員環および／または6員環の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項3】 下記一般式（III）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化3】

## 一般式（III）

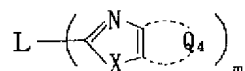


（式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>3</sub>は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項4】 下記一般式（IV）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化4】

## 一般式（IV）

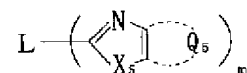


（式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>4</sub>は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項5】 下記一般式（V）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化5】

## 一般式（V）

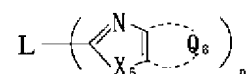


（式中、X<sub>5</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>5</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項6】 下記一般式（VI）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化6】

## 一般式（VI）

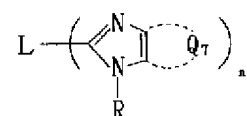


（式中、X<sub>6</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>6</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項7】 下記一般式（VII）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化7】

## 一般式（VII）

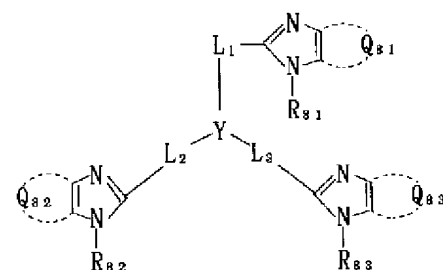


（式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>7</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。）

【請求項8】 下記一般式（VIII）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

## 【化8】

## 一般式（VIII）



（式中、Q<sub>81</sub>、Q<sub>82</sub>およびQ<sub>83</sub>は、それぞれ6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。

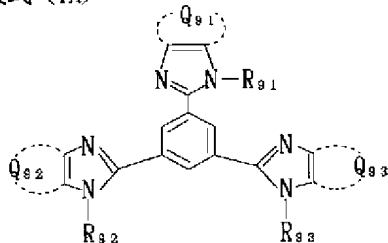
R<sub>81</sub>、R<sub>82</sub>およびR<sub>83</sub>は、それぞれ水素原子、脂肪族炭

化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub> および L<sub>3</sub> は、それぞれ連結基を表す。Y は窒素原子または 1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表す。)

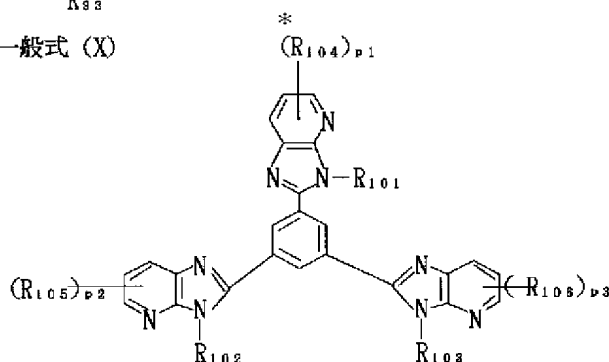
【請求項 9】 下記一般式 (IX) で表されることを特徴とする化合物。

【化 9】

一般式 (IX)



一般式 (X)

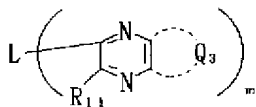


(式中、R<sub>101</sub>、R<sub>102</sub> および R<sub>103</sub> は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。R<sub>104</sub>、R<sub>105</sub> および R<sub>106</sub> は、それぞれ置換基を表す。p<sub>1</sub>、p<sub>2</sub> および p<sub>3</sub> は、それぞれ 0 ないし 3 の整数を表す。)

【請求項 11】 下記一般式 (XI) で表される化合物 30 であることを特徴とする発光素子材料。

【化 11】

一般式 (XI)



(式中、Q<sub>3</sub> は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。R<sub>11</sub> は水素原子または置換基を表す。m は 2 40 以上の整数を表す。L は連結基を表す。)

【請求項 12】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項 1～11 記載の一般式 (I)～(XI) で表される化合物の少なくとも一種を含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項 13】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項 1～11 記載の一般式 (I)～(XI) で表される化合物の少なくとも一種を

\* (式中、Q<sub>91</sub>、Q<sub>92</sub> および Q<sub>93</sub> は、それぞれ 6 員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。

R<sub>91</sub>、R<sub>92</sub> および R<sub>93</sub> は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

【請求項 10】 下記一般式 (X) で表されることを特徴とする化合物。

【化 10】

※ポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

【請求項 14】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、発光層と陰極との間の少なくとも一層が請求項 1～11 記載の一般式 (I)～(XI) で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項 15】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、青色発光層と陰極との間の少なくとも一層が請求項 1～11 記載の一般式 (I)～(XI) で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項 16】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、請求項 1～11 記載の一般式 (I)～(XI) で表される化合物を少なくとも一種含有する層に青色発光材料を含有することを特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規ヘテロ環化合物に関する。詳しくは電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子用材料および発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア

等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

# 【0002】

【従来の技術】今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光(EL)素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている

(アプライド フィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(Alq)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料(アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

【0003】上記積層型発光素子の発光効率を更に改良する手段として、蛍光色素をドーピングする方法が知られている。例えば、ジャーナル オブ アプライド フィジックス 65巻、3610頁、1989年に記載のクマリン色素をドーピングした発光素子はドーピングしない素子に比べて発光効率が大幅に向上している。この場合、用いる

蛍光性化合物の種類を変えることにより所望の波長の光を取り出すことが可能であるが、電子輸送材料としてAlqを用いた場合、高輝度を得るために駆動電圧を高くすると、ドーピングした蛍光性化合物の発光の他にAlqの緑色発光が観測されてくるため、青色を発光させる場合には色純度の低下が問題になり、色純度を低下させないホスト材料の開発が望まれている。これを改良するものとして特開平10-92578号、米国特許第5766779号に特定のインドール誘導体が開示されている

が、記載の化合物では高輝度発光のためには駆動電圧を高くする必要があるなどの問題があり、低電圧で高輝度発光可能な化合物の開発が望まれていた。また、発光効率を高める方法として3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール(TAZ)、バソクプロイン(BCP)などのホールブロック性材料を用いる方法が報告されているが、これら公知の材料では耐久性、特に高温保存経時、連続発光での素子劣化が大きな問題となっていた。また、色純度が良好で発光効率が高い従来の素子は電荷輸送材料中に蛍光性色素を微量ドーピングしたものであり、製造上素子特性の再現性を出すことが難しいことや、色素の耐久性が低いために長時間使用した場合に輝度の低下、色変化が起きるなどの問題があった。これを解決する手段として電荷輸送機能と発光機能を兼ねた材料の開発が望まれているが、これまで開発された材料では蛍光性色素を高濃度で用いると、濃度消光、会合等により高輝度発光が難しいといった問題があった。

【0004】一方、有機発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。

しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

# 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明の第一の目的は、発光特性が良好であり、また繰り返し使用時での安定性に優れた発光素子用材料および発光素子の提供にある。本発明の第二の目的は、色純度に優れた発光素子およびそれを可能にする発光素子用材料の提供にある。本発明の第三の目的は、各種電子デバイス等に有効な新規ヘテロ環化合物を提供することにある。

# 【0006】

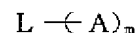
【課題を解決するための手段】この課題は下記手段によって達成された。

【0007】〔1〕下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

# 【0008】

## 【化12】

### 一般式(I)



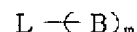
【0009】(式中、Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔2〕下記一般式(II)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

# 【0010】

## 【化13】

### 一般式(II)



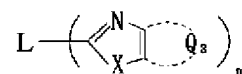
【0011】(式中、Bは二つ以上の5員環および/または6員環の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔3〕下記一般式(III)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

# 【0012】

## 【化14】

### 一般式(III)



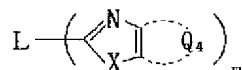
【0013】(式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>3</sub>は芳香族ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔4〕下記一般式(IV)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0014】

〔化15〕

一般式(IV)



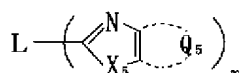
【0015】(式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>4</sub>は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔5〕下記一般式(V)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0016】

〔化16〕

一般式(V)



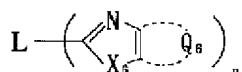
【0017】(式中、X<sub>5</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>5</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔6〕下記一般式(VI)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0018】

〔化17〕

一般式(VI)



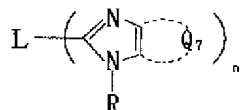
【0019】(式中、X<sub>6</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>6</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔7〕下記一般式(VII)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0020】

〔化18〕

一般式(VII)



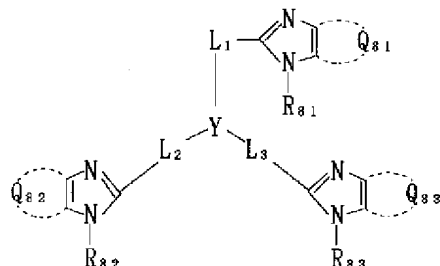
【0021】(式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>7</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

〔8〕下記一般式(VIII)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0022】

〔化19〕

一般式(VIII)



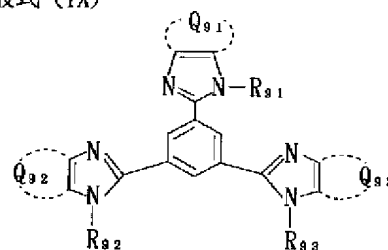
20 【0023】(式中、Q<sub>81</sub>、Q<sub>82</sub>およびQ<sub>83</sub>は、それぞれ6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。R<sub>81</sub>、R<sub>82</sub>およびR<sub>83</sub>は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>およびL<sub>3</sub>は、それぞれ連結基を表す。Yは窒素原子または1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表す。)

〔9〕下記一般式(IX)で表されることを特徴とする化合物。

【0024】

30 【化20】

一般式(IX)



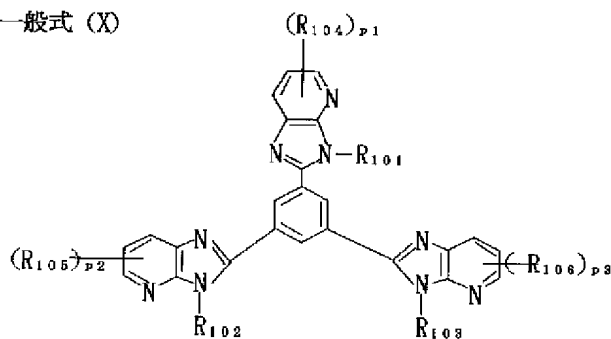
40 【0025】(式中、Q<sub>91</sub>、Q<sub>92</sub>およびQ<sub>93</sub>は、それぞれ6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。R<sub>91</sub>、R<sub>92</sub>およびR<sub>93</sub>は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

〔10〕下記一般式(X)で表されることを特徴とする化合物。

【0026】

〔化21〕

一般式 (X)



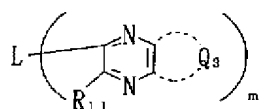
【0027】(式中、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$  および  $R_{103}$  は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリアル基またはヘテロ環基を表す。 $R_{104}$ 、 $R_{105}$  および  $R_{106}$  は、それぞれ置換基を表す。 $p_1$ 、 $p_2$  および  $p_3$  は、それぞれ0ないし3の整数を表す。)

【11】下記一般式(XI)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0028】

【化22】

一般式 (XI)



【0029】(式中、 $Q_3$  は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 $R_{11}$  は水素原子または置換基を表す。 $m$  は2以上の整数を表す。 $L$  は連結基を表す。)

【12】一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が【1】～【11】記載の一般式(I)～(XI)で表される化合物の少なくとも一種を含有する層であることを特徴とする発光素子。

【13】一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が【1】～【11】記載の一般式(I)～(XI)で表される化合物の少なくとも一種をポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

【14】一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、発光層と陰極との間の少なくとも一層が【1】～【11】記載の一般式(I)～(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【15】一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、青色発光層と陰極との間の少なくとも一層が【1】～【11】記載の一般式(I)～(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

\*【16】一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、

【1】～【11】記載の一般式(I)～(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層に青色発光材料を含有することを特徴とする発光素子。

【0030】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。まず、一般式(I)で表される化合物について説明する。Aは二つ以上の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。Aで表されるヘテロ環基として好ましくは5員環または6員環の芳香族ヘテロ環が縮合したものであり、より好ましくは2ないし6個、更に好ましくは2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族ヘテロ環が縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ましくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ましくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子である。Aで表されるヘテロ環基を構成する芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾールであり、より好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンである。

【0031】Aで表される縮合環の具体例としては、例えばインドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、トリアゾロピリジン、テトラザインデン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリ

ジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジン、ピラジノピリダジン、ナフチリジン、イミダゾトリアジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、オキサゾロピリジン、チアゾロピリジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジンである。

【0032】Aで表されるヘテロ環基は更に他の環と縮合してもよく、また置換基を有してもよい。Aで表されるヘテロ環基の置換基としては、例えばアルキル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、i s o -ブチル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。）、アリール基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p -メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ヒパロイルなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカル

ボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニル基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。）、アシルオキシ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。）、アシルアミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、スルホニルアミノ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。）、スルファモイル基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。）、カルバモイル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。）、アルキルチオ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。）、アリールチオ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。）、スルホニル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。）、スルフィニル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。）、ウレイド基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。）、リン酸アミド基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フ

ェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼビニルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0033】Aで表されるヘテロ環基の置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリーロキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、

カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。mは2以上の整数を表し、好ましくは2ないし8、より好ましくは2ないし6、更に好ましくは2ないし4であり、特に好ましくは2または3であり、最も好ましくは3である。Lは連結基を表す。Lで表される連結基として好ましくは、単結合、C、N、O、S、Si、Geなどで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環(好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくはアゾール、チオフエン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。)およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびNとこれらの組み合わせから成る基である。

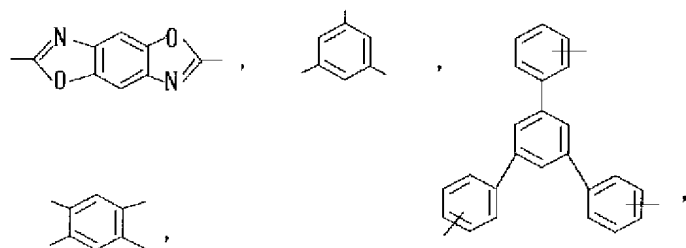
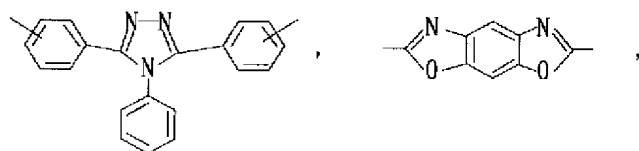
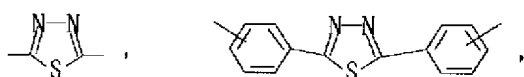
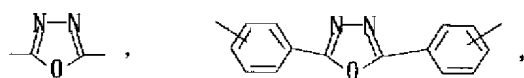
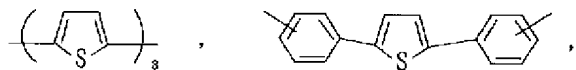
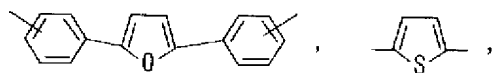
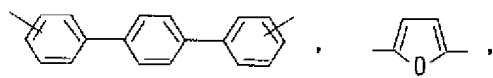
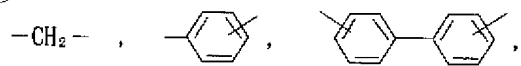
【0034】Lで表される連結基の具体例としては、単結合の他、例えば以下のものが挙げられる。

【0035】

【化23】

15

16

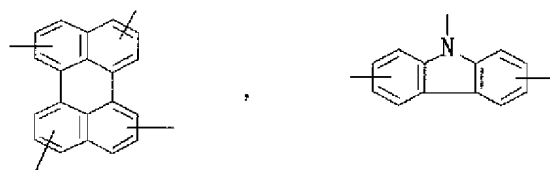
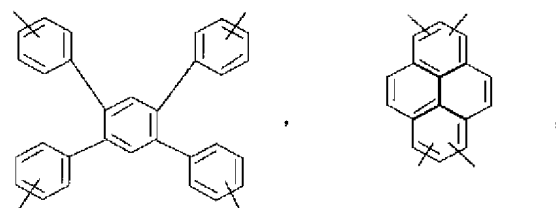
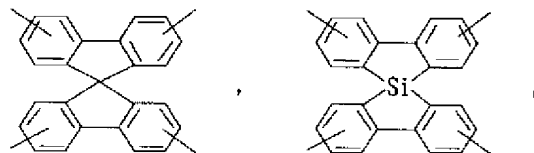
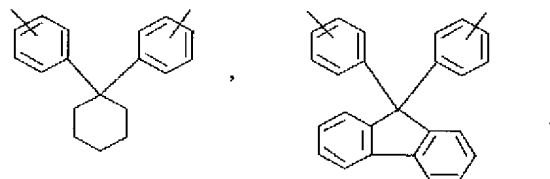
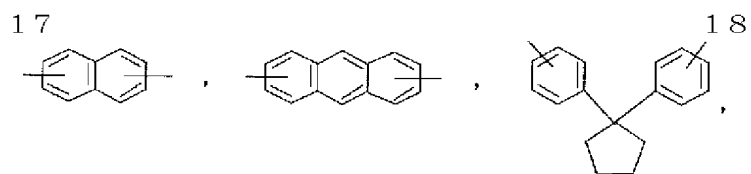


【0036】

\* \* 【化24】

(10)

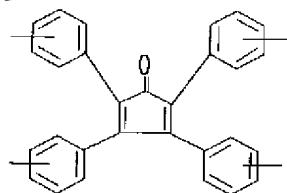
特開2001-335776



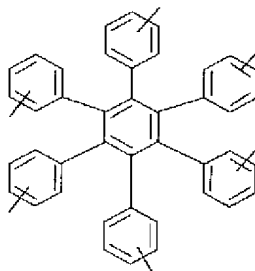
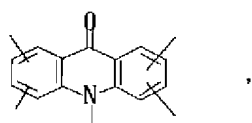
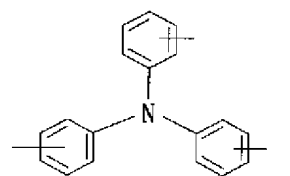
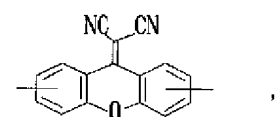
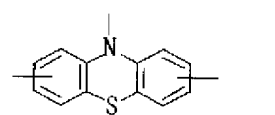
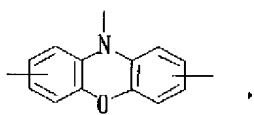
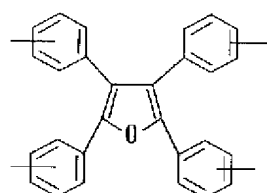
【0037】

\* \*【化25】

19

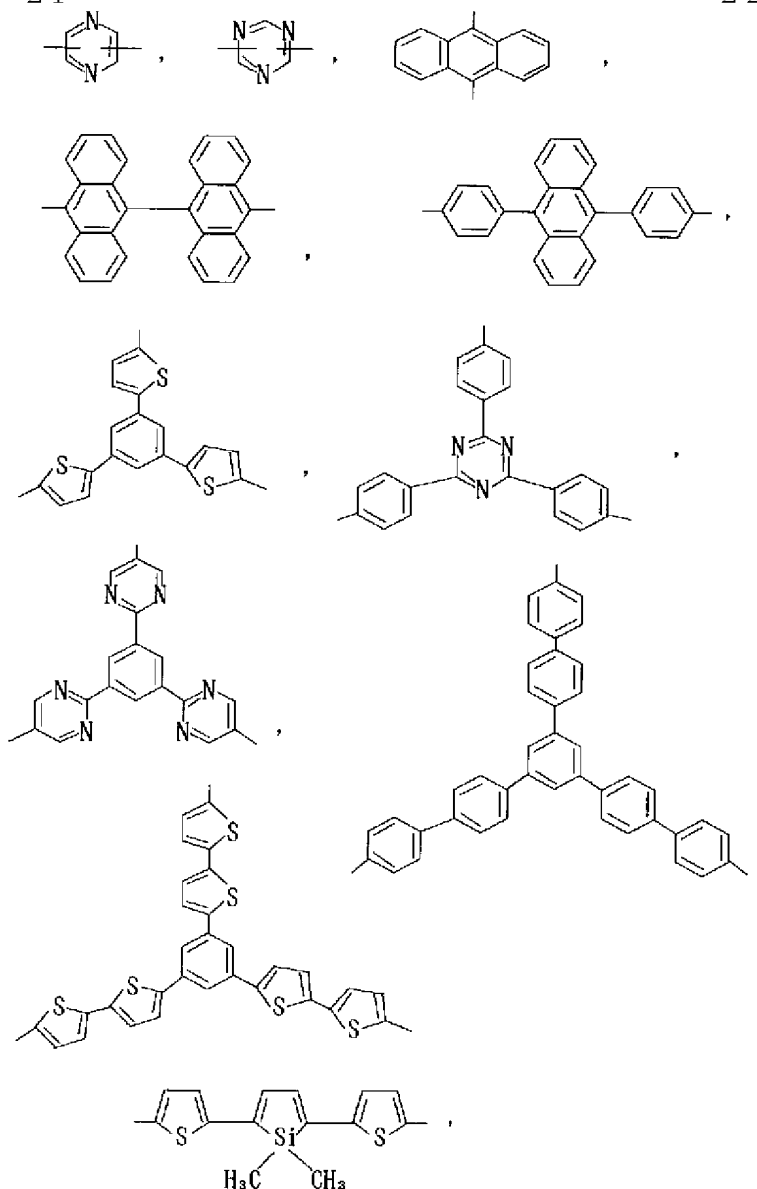


20



【0038】

\* \* 【化26】



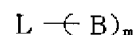
【0039】Lで表される連結基は置換基を有してもよく、置換基としては例えばAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0040】一般式（I）で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式（II）で表される化合物である。

【 0 0 4 1 】

【化27】

一般式 (II)



【0042】式中、m、Lは、それぞれ一般式（I）におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Bは二つ以上の5員環および／または6員環の芳香族ヘテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。Bで表されるヘテロ環基として好ましくは5員環または6員環の芳香族ヘテロ環が2ないし6個縮合したものであり、更に好ましくは2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族ヘテロ環が縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ましくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ましくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子である。Bで表されるヘテロ環基を構成する芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオ

フェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾールであり、より好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンである。

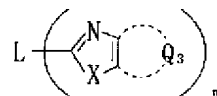
【0043】Bで表される縮合環の具体例としては、例えばインドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、トリアゾロピリジン、テトラザインデン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジン、ピラジノピリダジン、ナフチリジン、イミダゾトリアジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、オキサゾロピリジン、チアゾロピリジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジンである。Bで表されるヘテロ環基は置換基を有してもよく、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0044】一般式(I)で表される化合物のうち、より好ましくは下記一般式(III)又は(XI)で表される化合物である。

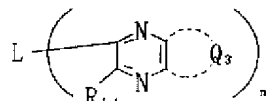
【0045】

【化28】

一般式(III)



一般式(XI)



10

【0046】一般式(III)について説明する。m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q3は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Rで表される脂肪族炭化水素基として好ましくは、アルキル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。))であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基である。

20

30

40

50

【0047】Rで表されるアリール基として好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、4-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、2-ビフェニル、3-ビフェニル、4-ビフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、1-ピレニルなどが挙げられる。Rで表されるヘテロ環基は、単環または縮合環のヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10のヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。Rで表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピロール、フラン、チオフェン、イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフト

オキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントロリン、テトラザインデンなどが挙げられ、好ましくはフラン、チオフエン、ピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフエン、ピリジン、キノリンであり、特に好ましくはキノリンである。

【0048】Rで表される脂肪族炭化水素基、アリアル基、ヘテロ環基は置換基を有してもよく、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。Rとして好ましくは、アルキル基、アリアル基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリアル基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリアル基、芳香族アゾール基である。

【0049】Xとして好ましくはO、S、N-Rであり、より好ましくはO、N-Rであり、更に好ましくはN-Rであり、特に好ましくはN-Ar(Arはアリアル基、芳香族アゾール基であり、より好ましくは炭素数6~30のアリアル基、炭素数2~30の芳香族アゾール基、更に好ましくは炭素数6~20のアリアル基、炭素数2~16の芳香族アゾール基、特に好ましくは炭素数6~12のアリアル基、炭素数2~10の芳香族アゾール基である。)である。

【0050】Q<sub>3</sub>は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>3</sub>で形成される芳香族ヘテロ環として好ましくは5または6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。Q<sub>3</sub>で形成される芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオフエン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。Q<sub>3</sub>で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

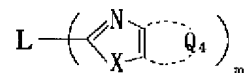
【0051】一般式(III)で表される化合物のうち、更

に好ましくは下記一般式(IV)で表される化合物である。

【0052】

【化29】

一般式(IV)



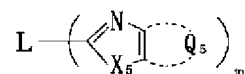
【0053】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Xは一般式(III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>4</sub>は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環として好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。Q<sub>4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。Q<sub>4</sub>で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0054】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(V)で表される化合物である。

【0055】

【化30】

一般式(V)



【0056】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。X<sub>5</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは一般式(II)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>5</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>5</sub>で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。Q<sub>5</sub>で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮

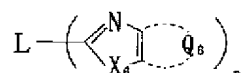
合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0057】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(VI)で表される化合物である。

【0058】

【化31】

一般式(VI)

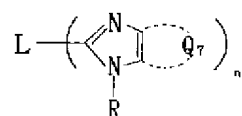


【0059】式中、Lは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。X<sub>6</sub>は一般式(V)におけるX<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>6</sub>は一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。nは2ないし8の整数を表し、好ましくは2ないし6、より好ましくは2ないし4であり、更に好ましくは2または3であり、特に好ましくは3である。一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(VII)で表される化合物である。

【0060】

【化32】

一般式(VII)



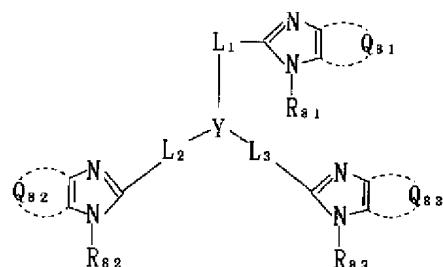
【0061】式中、Lは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Rは一般式(III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>7</sub>は一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。nは一般式(VI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0062】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(VIII)で表される化合物である。

【0063】

【化33】

一般式(VIII)



10

【0064】式中、R<sub>81</sub>、R<sub>82</sub>およびR<sub>83</sub>は、それぞれ一般式(III)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>81</sub>、Q<sub>82</sub>およびQ<sub>83</sub>は、それぞれ一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>およびL<sub>3</sub>は、それぞれ一般式(I)におけるLと同義である。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub>として好ましくは、単結合、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびこれらの組合わせから成る連結基であり、より好ましくは単結合、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピリジン、ピラジン、チオフェン、フラン、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾールおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、更に好ましくは単結合、ベンゼン、チオフェンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、特に好ましくは単結合、ベンゼンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、最も好ましくは単結合である。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub>は置換基を有してもよく、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。

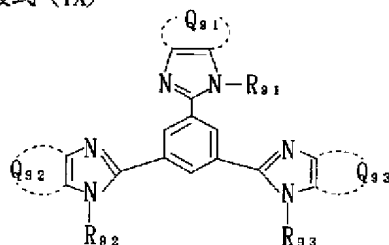
20

【0065】Yは窒素原子または1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表すが、後者は2, 4, 6位に置換基を有してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリール基、ハロゲン原子などが挙げられる。Yとして好ましくは窒素原子または無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基であり、より好ましくは無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。一般式(III)で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式(IX)で表される化合物である。

【0066】

【化34】

一般式(IX)



【0067】式中、R<sub>91</sub>、R<sub>92</sub>およびR<sub>93</sub>は、それぞれ一般式(III)におけるRと同義であり、また好ましい範

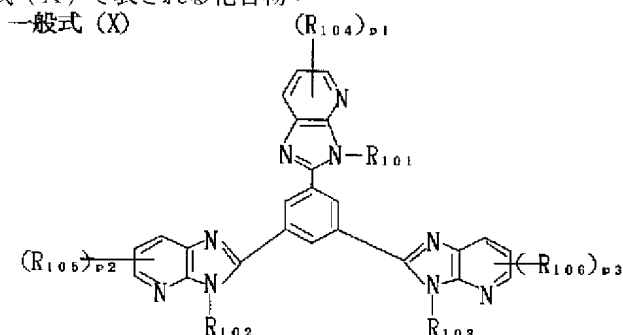
50

囲も同様である。Q<sub>91</sub>、Q<sub>92</sub>およびQ<sub>93</sub>は、それぞれ一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。一般式(III)で表される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式(X)で表される化合物\*

\*である。

【0068】

【化35】



【0069】式中、R<sub>101</sub>、R<sub>102</sub>およびR<sub>103</sub>は、それぞれ一般式(X)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>104</sub>、R<sub>105</sub>およびR<sub>106</sub>は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。また可能な場合、置換基同士が連結して環を形成してもよい。p<sub>1</sub>、p<sub>2</sub>およびp<sub>3</sub>は、それぞれ0ないし3の整数を表し、好ましくは0ないし2、より好ましくは0または1、更に好ましくは0である。

【0070】次に一般式(XI)について説明する。m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>3</sub>は一般式(III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>11</sub>は水素原子または置換基を表す。R<sub>11</sub>で表される置換基としては例えば一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。R<sub>11</sub>で表される置換基として好ましくは、脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくは、アルキル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、4-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチルなどが挙げられ

る。)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。芳香族ヘテロ環と※50

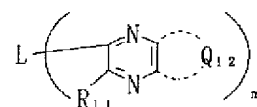
※しては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピロール、フラン、チオフェン、イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントロリン、テトラザインデン、カルバゾールなどが挙げられ、好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、更に好ましくはキノリンである。)であり、更に好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基である。R<sub>11</sub>で表される置換基は、更に置換されてもよく、また可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0071】一般式(XI)で表される化合物のうち、より好ましくは下記一般式(XII)で表される化合物である。

【0072】

【化36】

一般式(XII)



【0073】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>12</sub>は一般式(IV)におけるQ<sub>4</sub>と同義であ

31

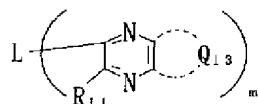
り、また好ましい範囲も同様である。R<sub>11</sub>は一般式(XI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0074】一般式(XI)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(XIII)で表される化合物である。

【0075】

【化37】

一般式(XIII)



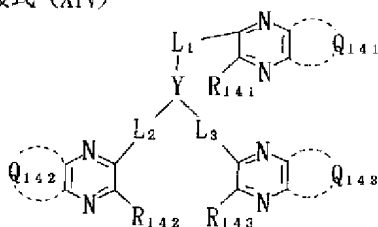
【0076】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>13</sub>は一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>11</sub>は一般式(XI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0077】一般式(XI)で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式(XIV)で表される化合物である。

【0078】

【化38】

一般式(XIV)



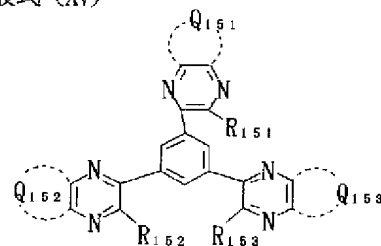
【0079】式中、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub> およびYは、それぞれ一般式(VIII)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>141</sub>、Q<sub>142</sub> およびQ<sub>143</sub> は、それぞれ一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>141</sub>、R<sub>142</sub> およびR<sub>143</sub> は、それぞれ一般式(XI)におけるR<sub>11</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0080】一般式(XI)で表される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式(XV)で表される化合物である。

【0081】

【化39】

一般式(XV)



【0082】式中、Q<sub>151</sub>、Q<sub>152</sub> およびQ<sub>153</sub> は、それぞれ一般式(V)におけるQ<sub>5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>151</sub>、R<sub>152</sub> およびR<sub>153</sub> は、それぞれ一般式(XI)におけるR<sub>11</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0083】以下に本発明の一般式(I)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0084】

【化40】

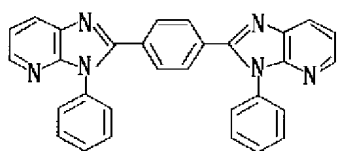
20

30

40

33

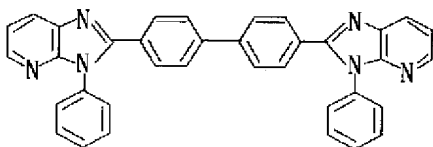
1.



【0085】

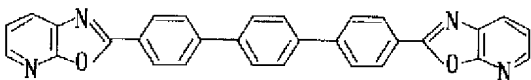
【化41】

2.

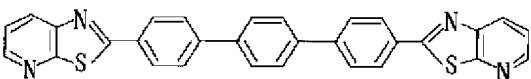


10

3.

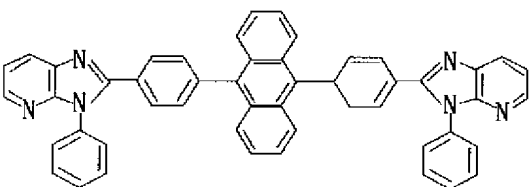


4.

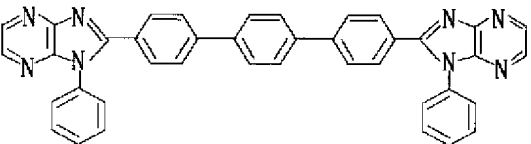


20

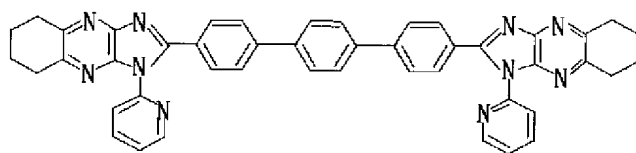
5.



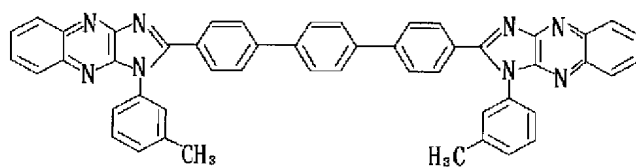
6.



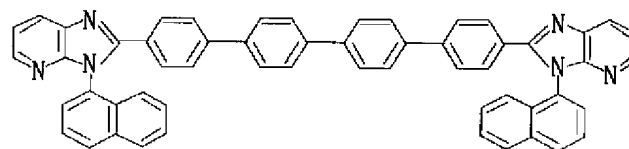
30

35  
7.

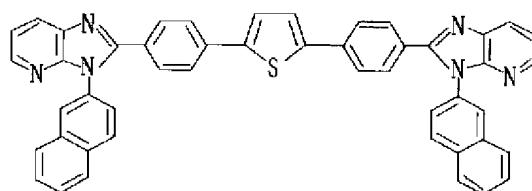
8.



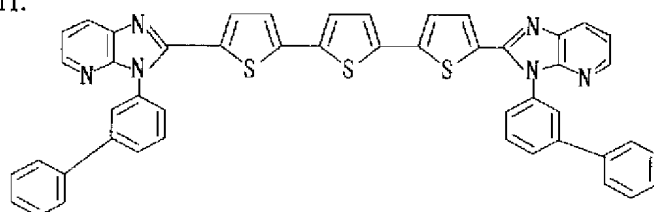
9.



10.

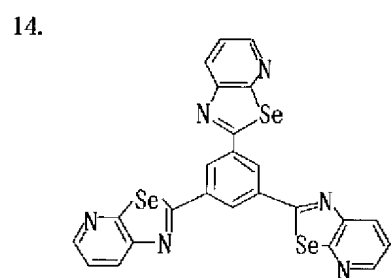
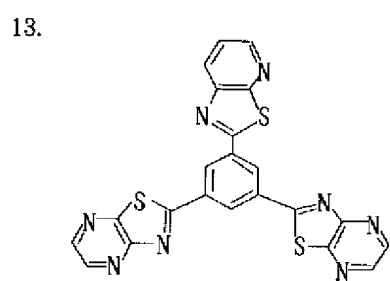
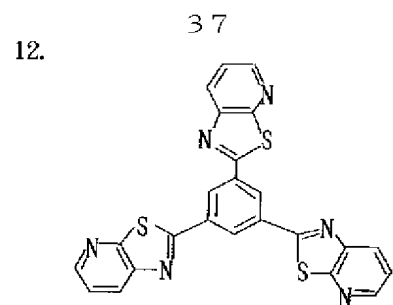


11.



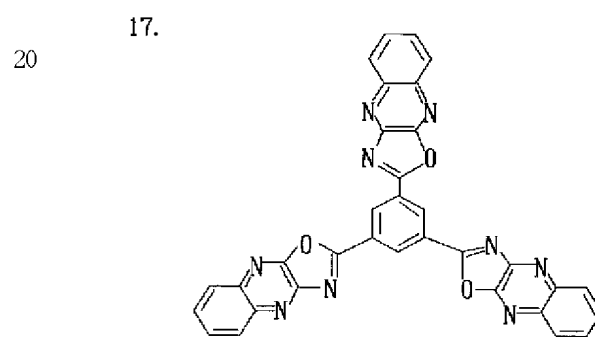
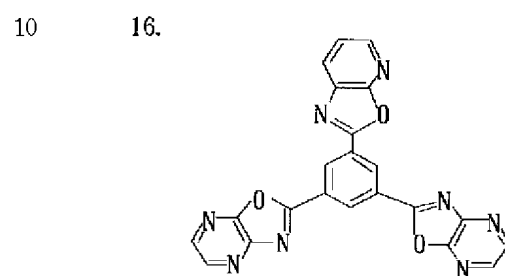
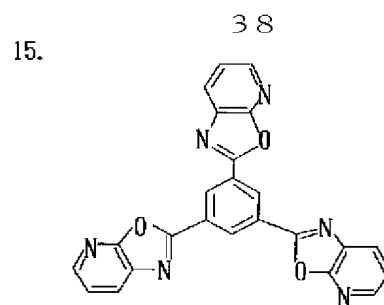
【0086】

【化42】



【0087】

【化43】

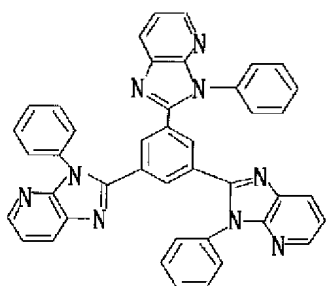


【0088】

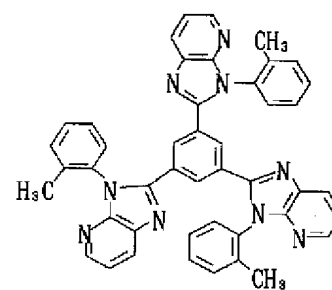
30 【化44】

18.

39

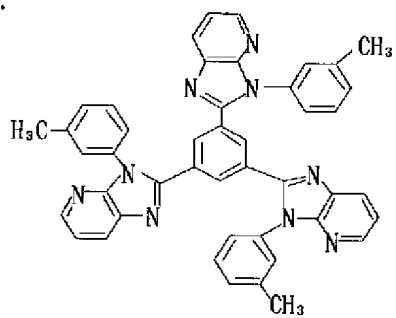


21.

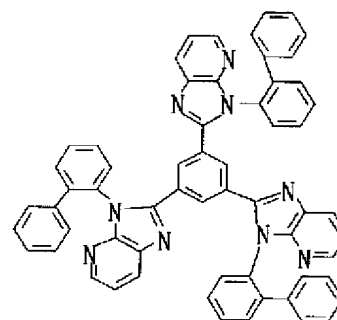


19.

10

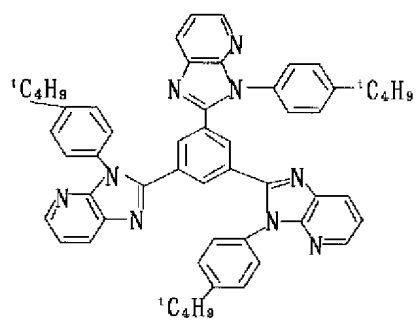


22.

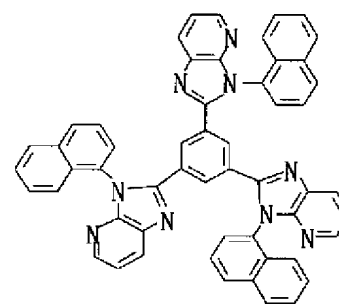


20.

20



23.



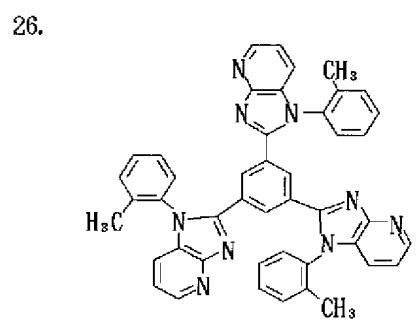
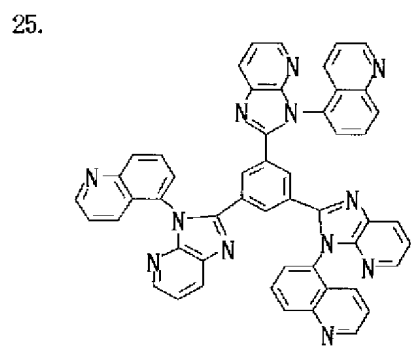
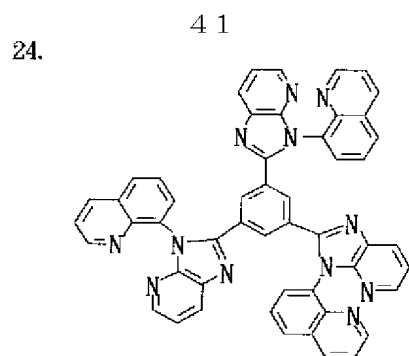
30

【0089】

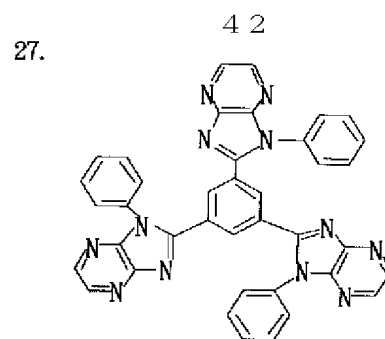
【化45】

【0090】

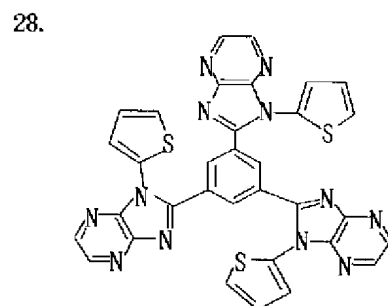
【化46】



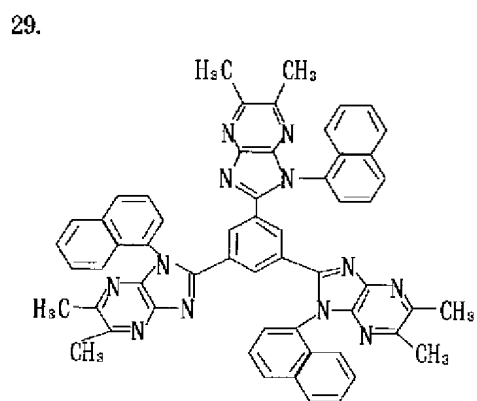
【0091】  
【化47】



10

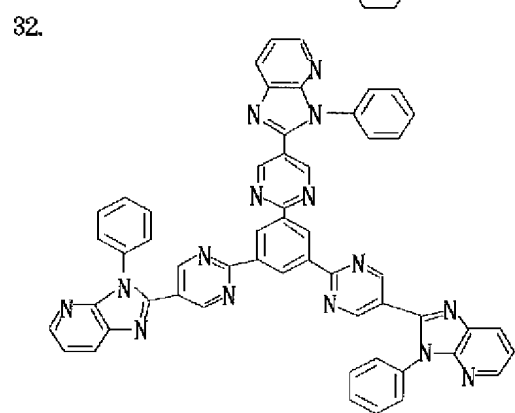
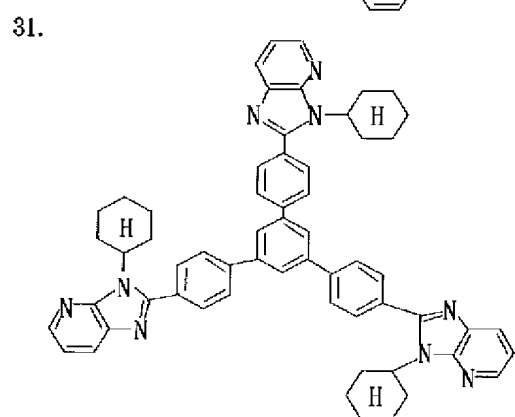
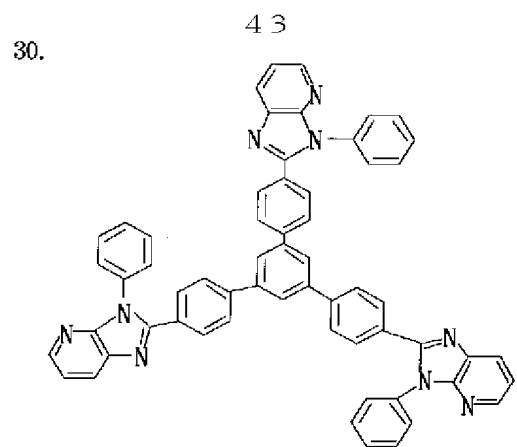


20

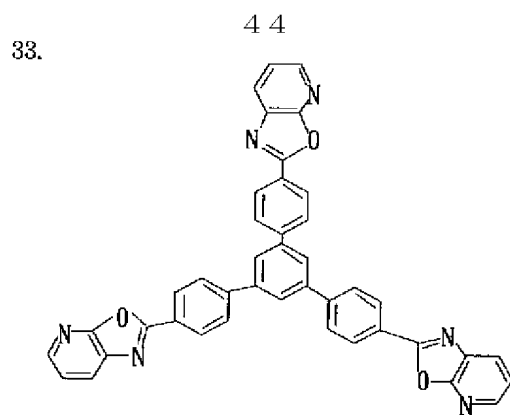


30

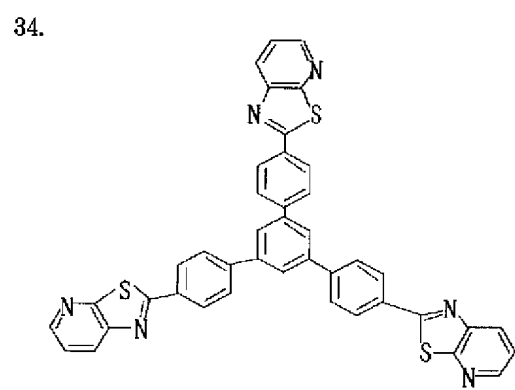
【0092】  
【化48】



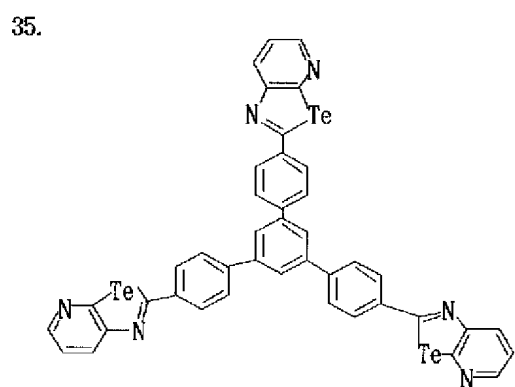
【0093】  
【化49】



10



20



30

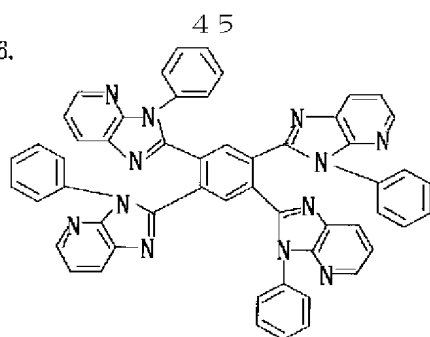
【0094】  
【化50】

(24)

特開2001-335776

46

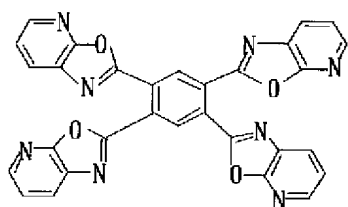
36.



【0095】

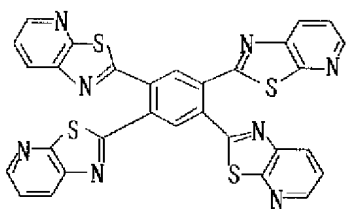
【化51】

37.



10

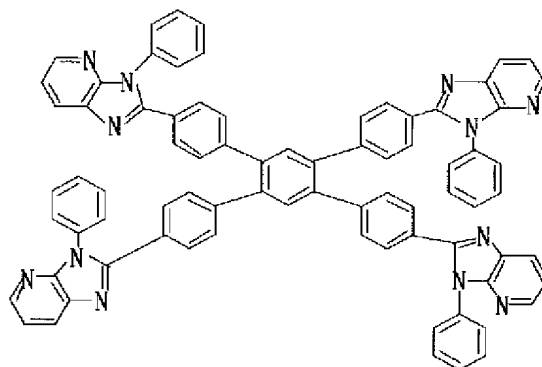
38.



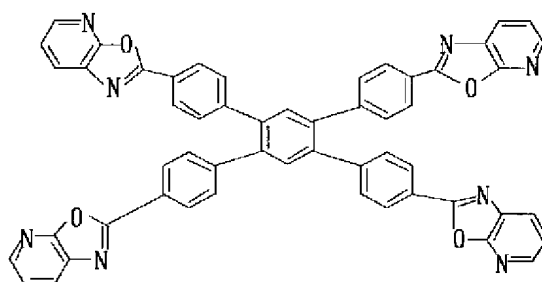
20

47  
39.

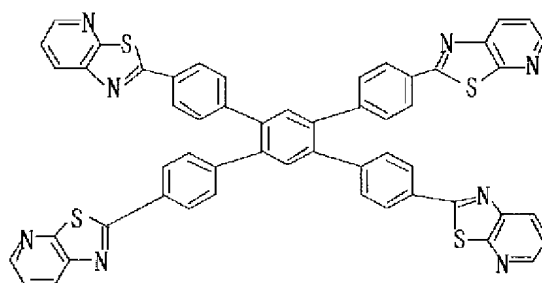
48



40.



41.



【0096】

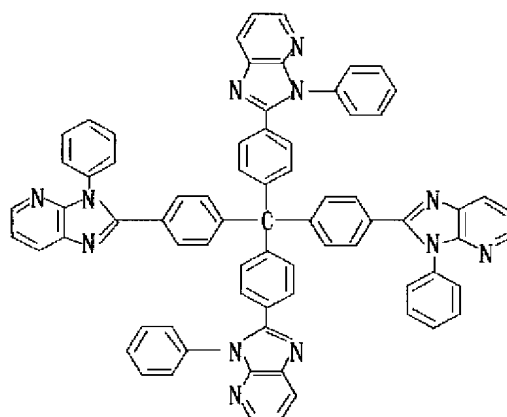
\* \* 【化52】

[illegible]

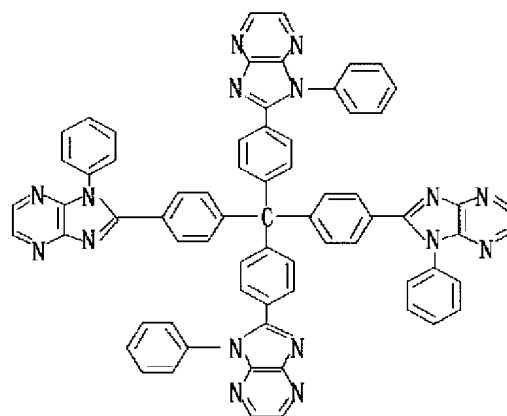
\* \* 【化53】

51  
44.

52

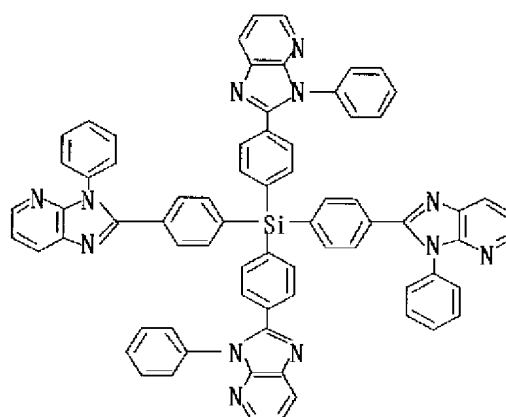


45.

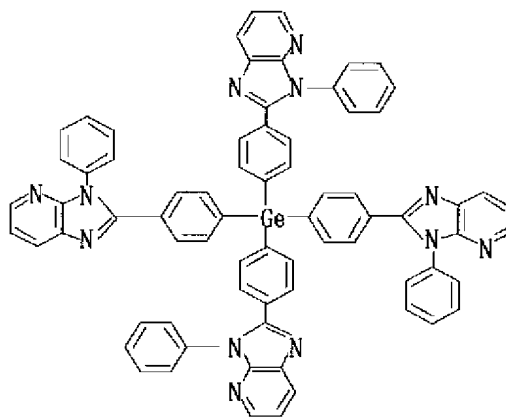


【0098】

\* \* 【化54】

53  
46.

47.

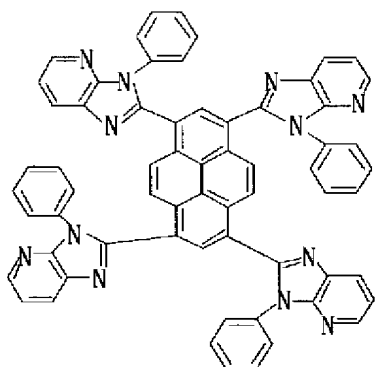


【0099】

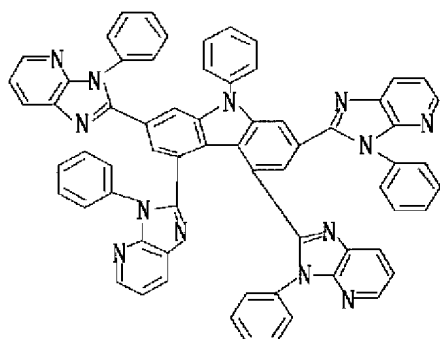
【化55】

48.

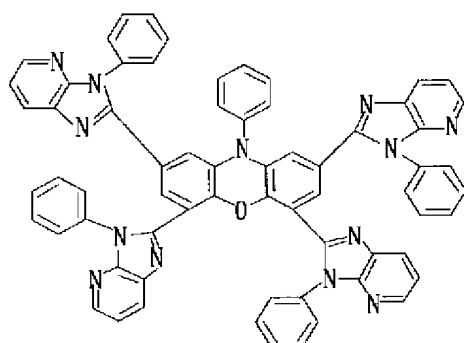
55



49.



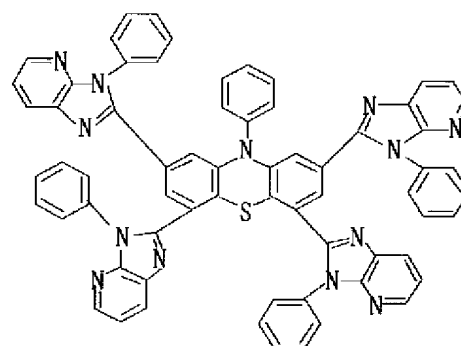
50.



【0100】

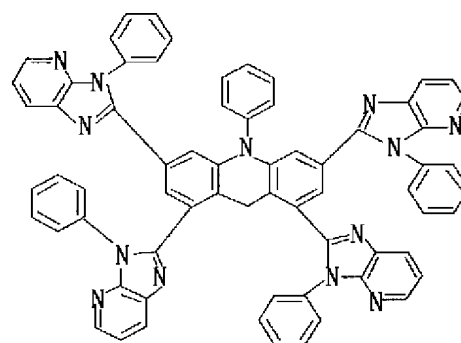
【化56】

51.



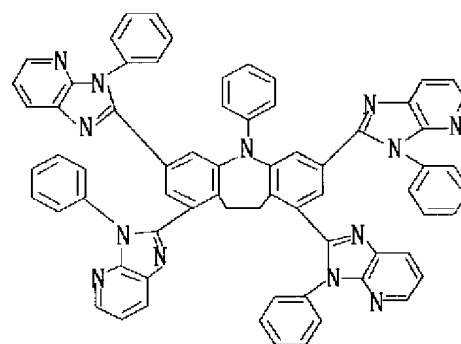
10

52.



20

53.



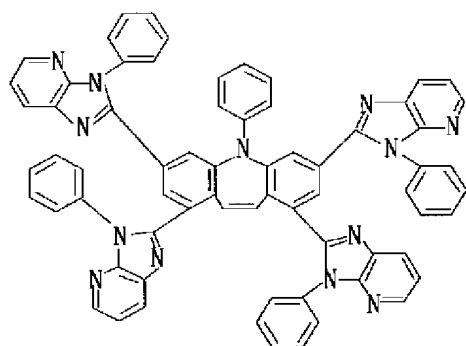
30

【0101】

【化57】

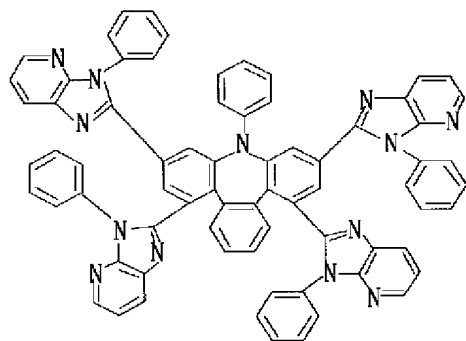
54.

57



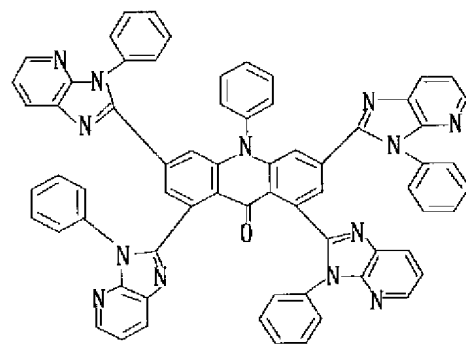
10

55.



20

56.



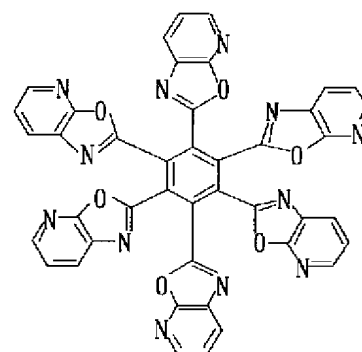
30

【0102】

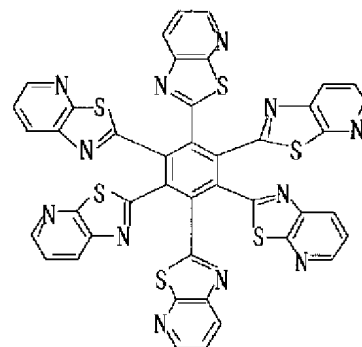
【化58】

57.

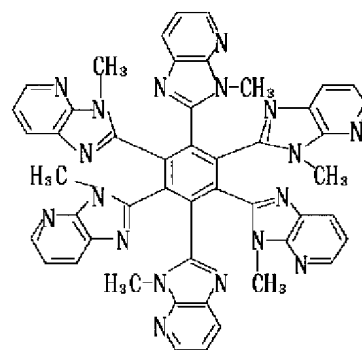
58



58.



59.

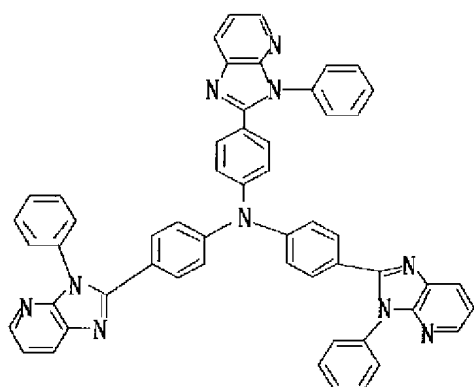


【0103】

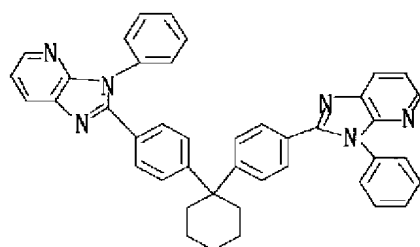
【化59】

60.

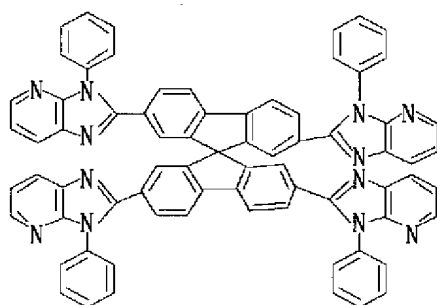
59



61.



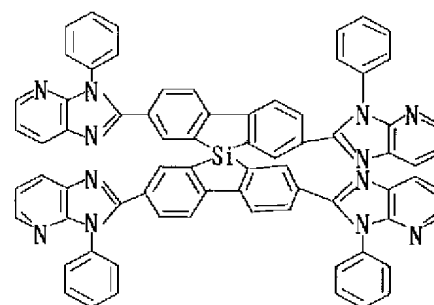
62.



【0104】

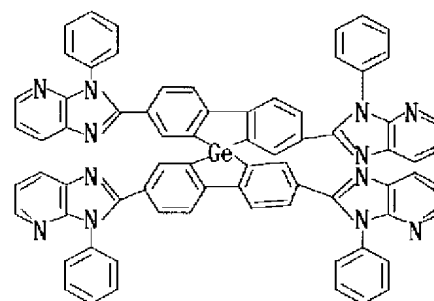
【化60】

63.



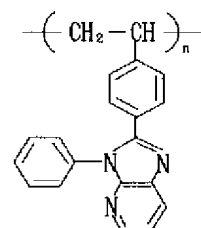
10

64.



20

65.



30

質量平均分子量 16,500

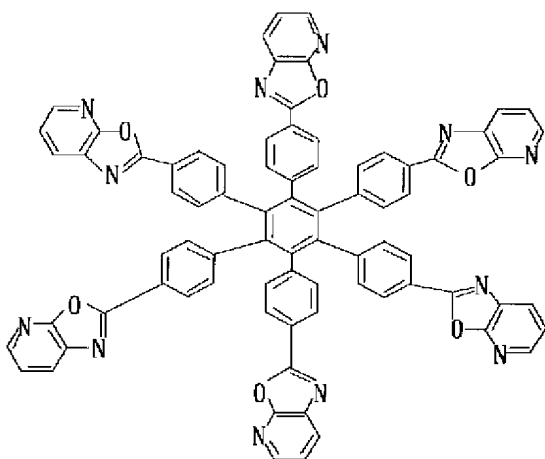
(ポリスチレン換算)

【0105】

【化61】

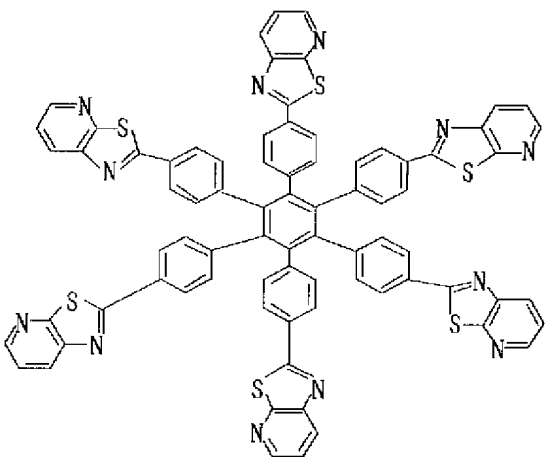
66.

61



10

67.



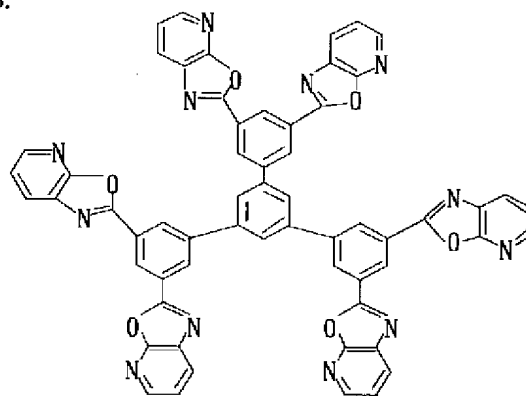
20

【0106】

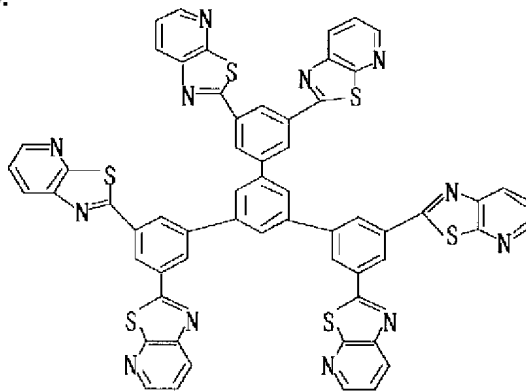
【化62】

68.

62



69.



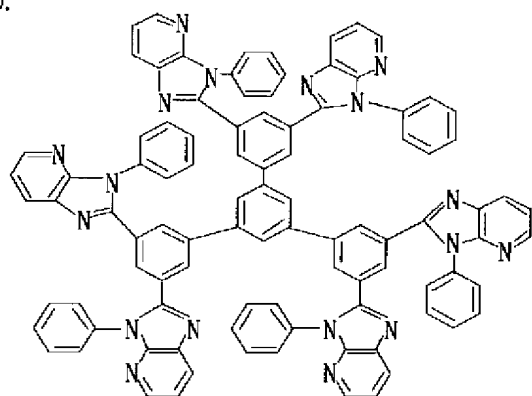
【0107】

【化63】

30

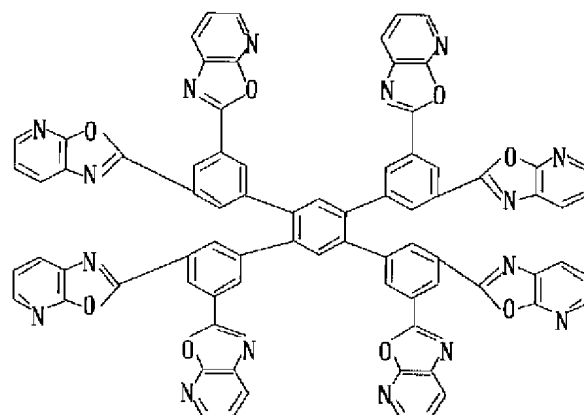
70.

63

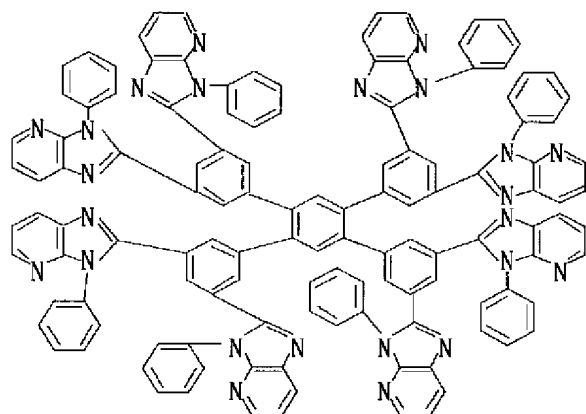


72.

10



71.

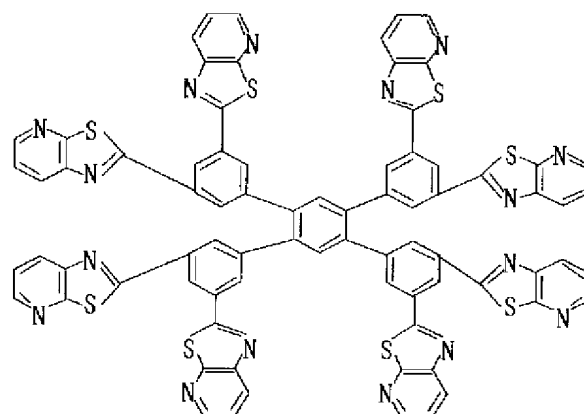


【0108】

【化64】

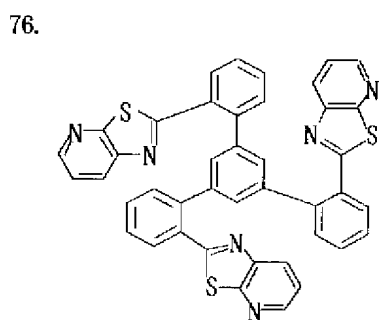
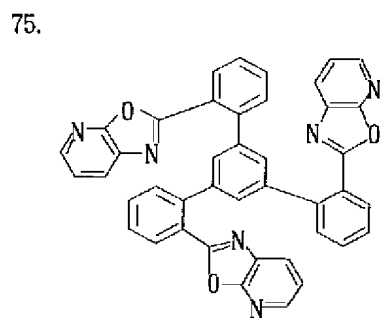
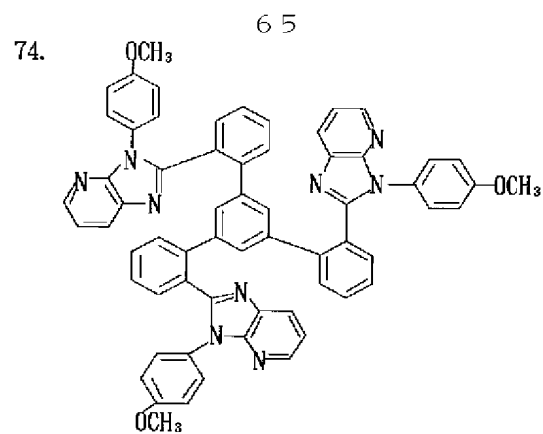
73.

20



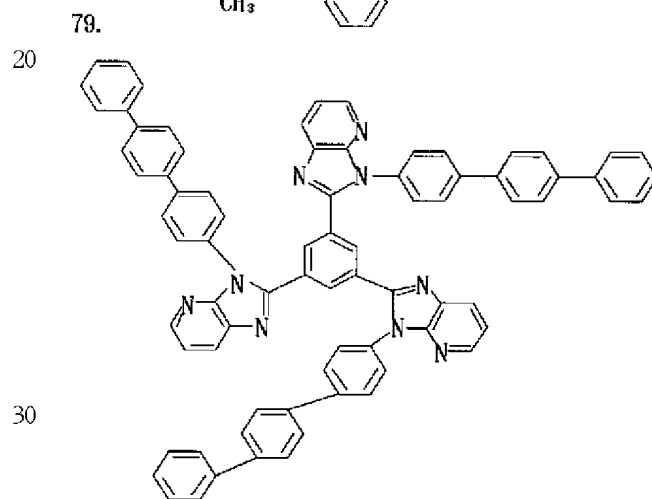
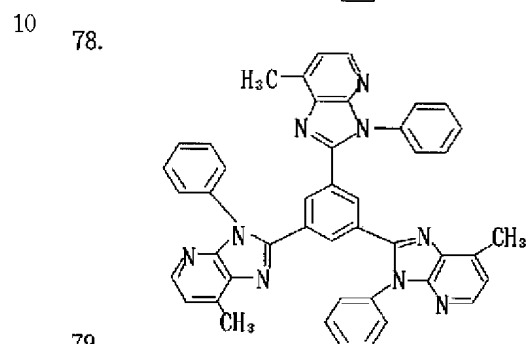
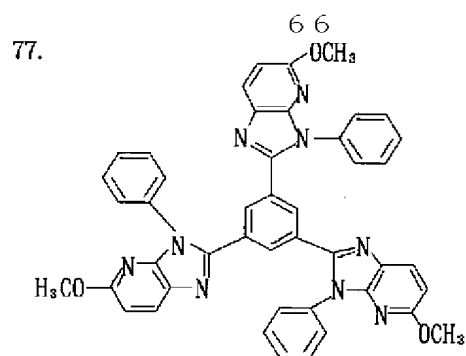
【0109】

30 【化65】



【0110】

【化66】



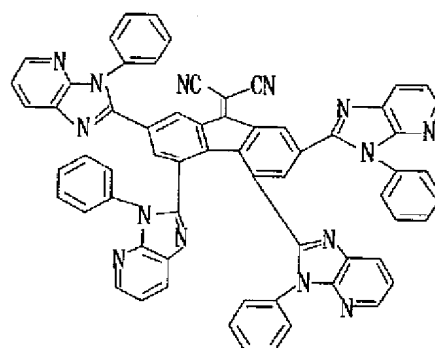
30

【0111】

【化67】

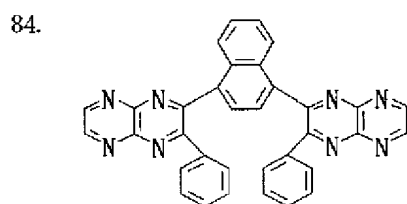
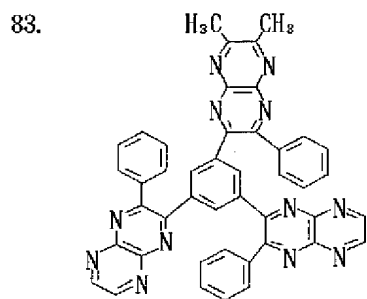
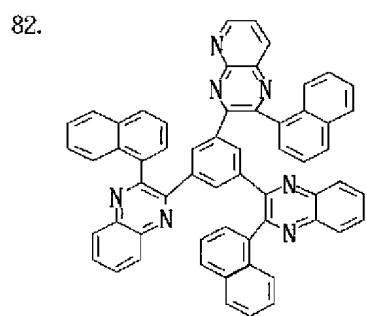
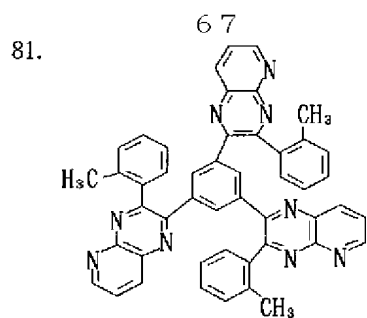
80.

40



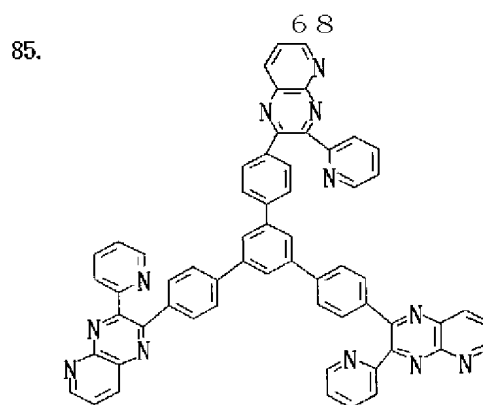
【0112】

【化68】

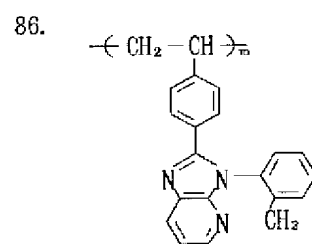


【0113】

【化69】

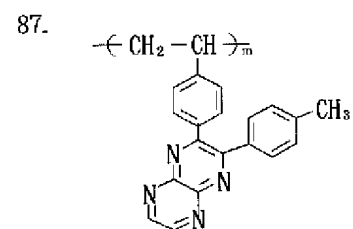


10



20

質量平均分子量 21,000 (ポリスチレン換算)

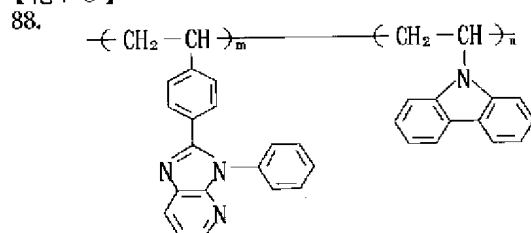


30

質量平均分子量 14,000 (ポリスチレン換算)

【0114】

【化70】



40

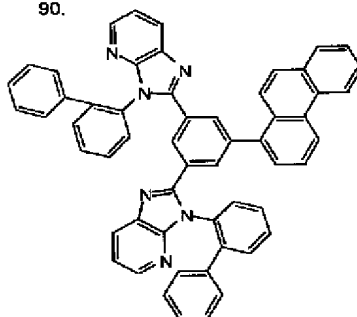
質量平均分子量 17,000 (ポリスチレン換算)

m : n = 1 : 1 (モル比)

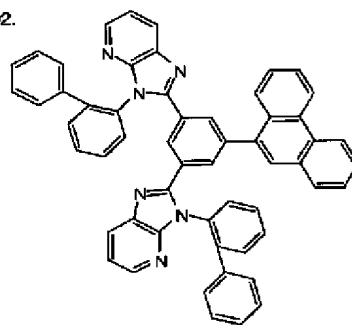
【0115】

【化71】

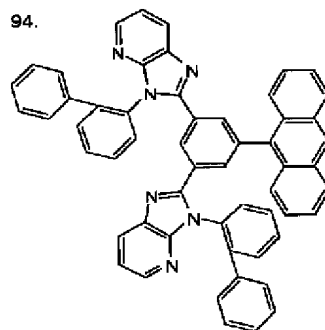
90.

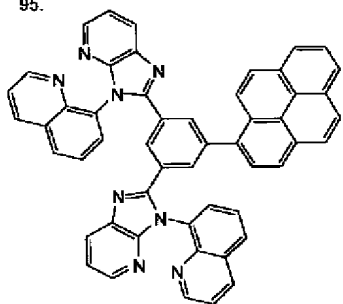


92.

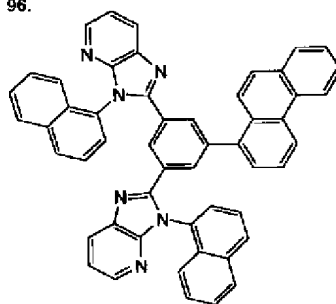


94.



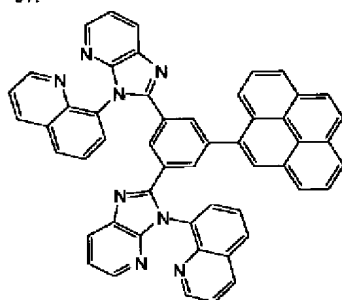
71  
95.

96.

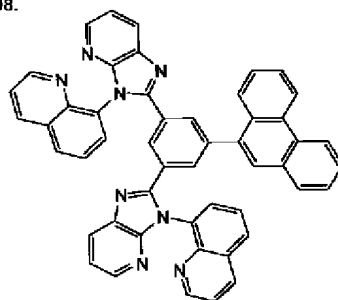


72

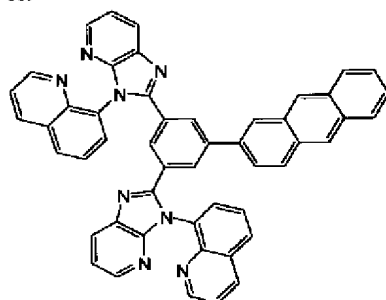
97.



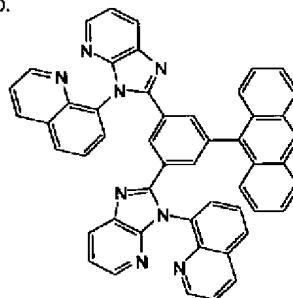
98.



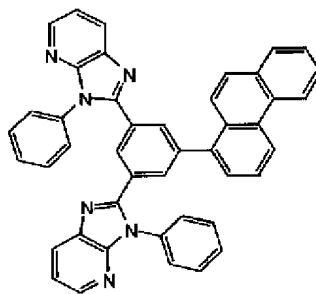
99.



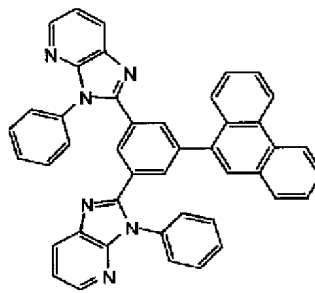
100.



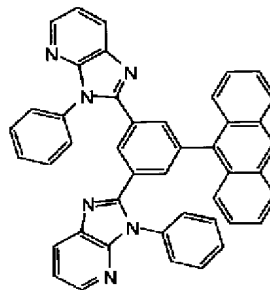
102.



104.



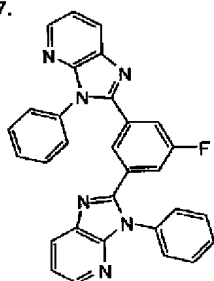
106.



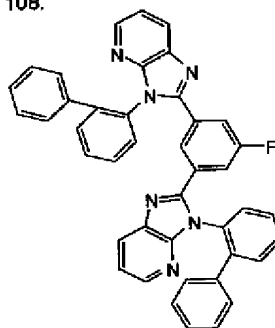
75

76

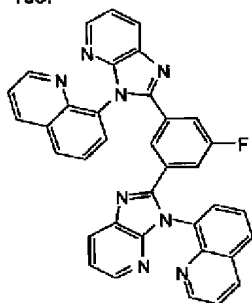
107.



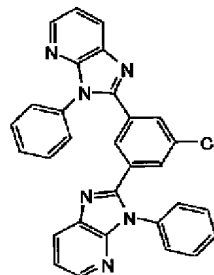
108.



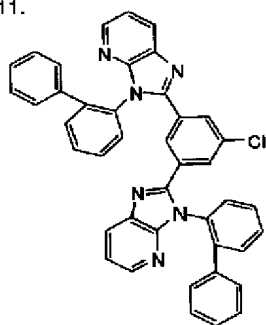
109.



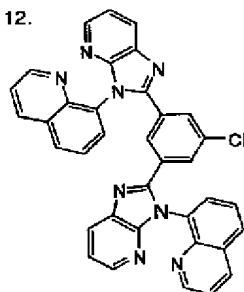
110.



111.

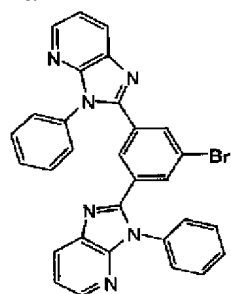


112.

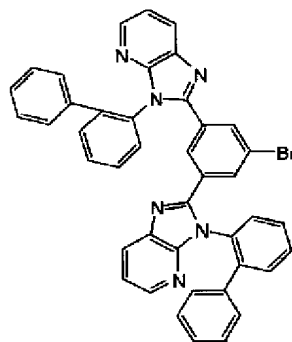


【0119】

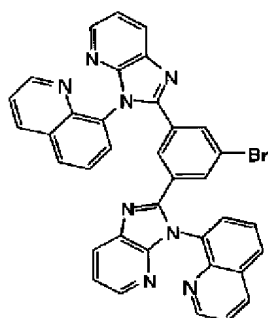
\* \* 【化75】

77  
113.

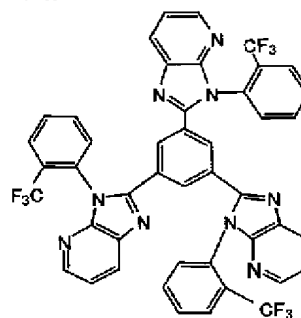
114



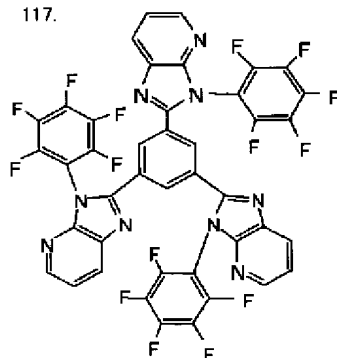
115.



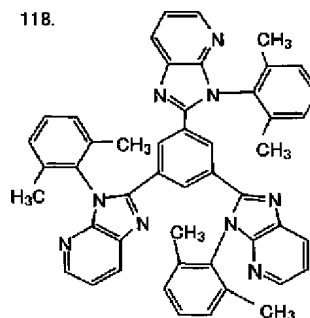
116.



117.



118.



【0120】一般式(I)～(XV)で表される本発明の化合物は、特公昭44-23025号、同48-8842号、特開昭53-6331号、特開平10-92578号、米国特許3,449,255号、同5,766,779号、J. Am. Chem. Soc., 94, 2414(1972)、Helv. Chim. Acta, 63, 413(1980)、Liebigs Ann. C\*

\* hem., 1423(1982)などに記載の方法を参考にして合成できる。

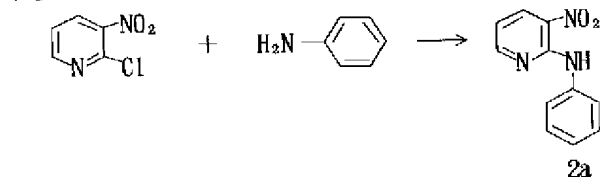
【0121】以下に本発明の化合物の合成法について具体例をもって説明する。

合成例1. 例示化合物2の合成

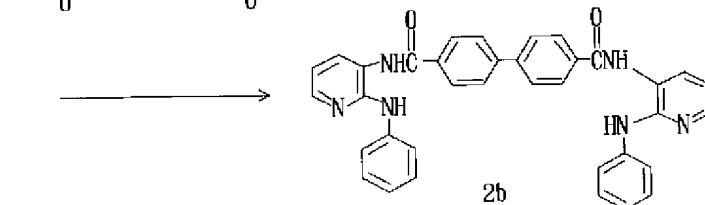
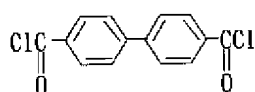
【0122】

【化76】

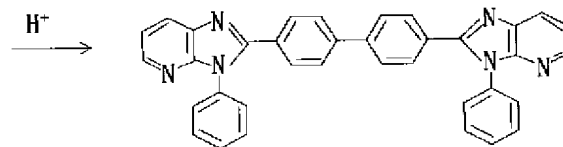
79

1)  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 

2)



2b



例示化合物 2

## 【0123】1-1. 化合物 2a の合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン 50.8 g (0.320 モル)、炭酸カリウム 90.8 g (0.657 モル)、ヨウ化銅 (I) 7.90 g (0.0416 モル)、トルエン 300 ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへ、アニリン 45.7 g (0.490 モル) を加えた。5 時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: クロロホルム) にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物 2a を 45.7 g (0.21 モル) 得た。収率 66%

## 【0124】1-2. 化合物 2b の合成

化合物 2a 17.0 g (0.0790 モル) をテトラヒドロフラン 170 ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへ、ヒドロサルファイトナトリウム 69.0 g (0.396 モル)/水 220 ミリリットルの溶液を滴下した。1 時間撹拌した後、酢酸エチル 170 ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム 13.6 g (0.162 モル)/水 140 ミリリッ\*

\*トルの溶液を滴下した。更に 4, 4'-ビフェニルジカルボニルクロリド 10.0 g (0.0358 モル)/酢酸エチル 100 ミリリットルの溶液を滴下し、室温下 5 時間撹拌した。析出した固体を濾取し、水、次いで酢酸エチルで洗浄することにより化合物 2b を 16.0 g (0.0277 モル) 得た。収率 77%

## 【0125】1-3. 例示化合物 2 の合成

化合物 2b 10.0 g (0.0173 モル)、p-トルエンスルホン酸一水和物 2.3 g (0.0121 モル) にキシレン 300 ミリリットルを加え、窒素雰囲気下 6 時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、ジメチルホルムアミド/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物 2 を 5.20 g (9.62 ミリモル) 得た。収率 57%

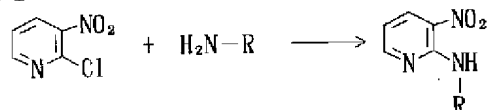
融点: 298~300℃

## 【0126】合成例 2. 例示化合物 18 の合成

## 【0127】

## 【化 77】

81



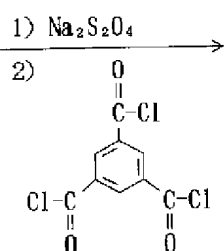
2a (R=phenyl)

19a (R=3-methylphenyl)

20a (R=4-tert-butylphenyl)

21a (R=2-methylphenyl)

24a (R=8-quinolyl)



18b (R=phenyl)

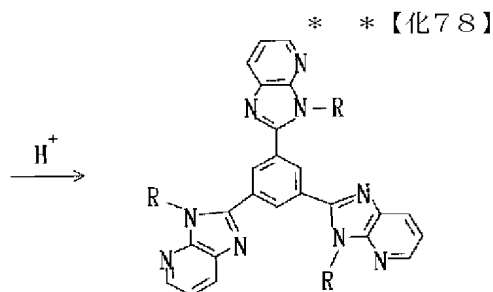
19b (R=3-methylphenyl)

20b (R=4-tert-butylphenyl)

21b (R=2-methylphenyl)

24b (R=8-quinolyl)

【0128】



例示化合物18 (R=phenyl)

例示化合物19 (R=3-methylphenyl)

例示化合物20 (R=4-tert-butylphenyl)

例示化合物21 (R=2-methylphenyl)

例示化合物24 (R=8-quinolyl)

【0129】2-1. 化合物18bの合成

化合物2a 15.0g (0.0697mol)をテトラヒドロフラン150ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム60.9g (0.345mol)／水200ミリリットルの溶液を滴下した。2時間撹拌した後、酢酸エチル150ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム12.0g (0.143mol)／水120ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド5.2g (0.0196mol)／酢酸エチル50ミリリットル※50

※ルの溶液を滴下し、室温下3時間撹拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム／メタノール=10／1(v/v))にて精製した後、ジメチルホルムアミド／アセトニトリルにて再結晶することにより化合物18bを4.1g (5.76ミリモル)得た。収率29%。

【0130】2-2. 例示化合物18の合成

化合物18b 3.70g (5.20ミリモル)、p-トルエンスルホン酸一水和物0.7g (3.68ミリモル)にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vol/vol))にて精製した後、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物18を1.70g (2.58ミリモル)得た。収率50%。融点:279~281℃

#### 【0131】合成例3. 例示化合物19の合成

##### 3-1. 化合物19aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン50.0g (0.315モル)、炭酸カリウム90.8g (0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g (0.0416モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、m-トルイジン45.0g (0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物19aを51.0g (0.222モル)得た。収率71%

##### 【0132】3-2. 化合物19bの合成

化合物19a 32.5g (0.142モル)をテトラヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム124g (0.712モル)/水320ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24.4g (0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g (0.0396モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(vol/vol))にて精製することにより化合物19bを10.2g (0.0135モル)得た。収率34%。

##### 【0133】3-3. 例示化合物19の合成

化合物19b 3.30g (4.38ミリモル)、p-トルエンスルホン酸一水和物0.5g (2.63ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vol/vol))にて精製した後、クロロ

ホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物19を1.97g (2.81ミリモル)得た。収率64%。

融点:258~259℃

#### 【0134】合成例4. 例示化合物20の合成

##### 4-1. 化合物20aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン45.5g (0.286モル)、炭酸カリウム81.1g (0.587モル)、ヨウ化銅(I)7.10g (0.0373モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、4-tert-ブチルアニリン40.0g (0.268モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物20aを52.0g (0.192モル)得た。収率72%

##### 【0135】4-2. 化合物20bの合成

化合物20a 34.8g (0.128モル)をテトラヒドロフラン350ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム112g (0.643モル)/水320ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール90ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル350ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム22.0g (0.262モル)/水50ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド9.5g (0.0358モル)/酢酸エチル90ミリリットルの溶液を滴下し、室温下2時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(vol/vol))にて精製することにより化合物20bを12.0g (0.0136モル)得た。収率38%。

##### 【0136】4-3. 例示化合物20の合成

化合物20b 3.00g (3.41ミリモル)、p-トルエンスルホン酸一水和物0.3g (1.58ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取した後、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物20を2.06g (2.49ミリモル)得た。収率73%。

融点:300℃以上

#### 【0137】合成例5. 例示化合物21の合成

##### 5-1. 化合物21aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン50.0g (0.315モル)、炭酸カリウム90.8g (0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g (0.0416モ

ル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、 $\alpha$ -トルイジン45.0g (0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物21aを46.3g (0.202モル)得た。収率64%

#### 【0138】5-2. 化合物21bの合成

化合物21a 32.5g (0.142モル)をテトラヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム124g (0.712モル)/水320ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24.4g (0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g (0.0396モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(v/v))にて精製することにより化合物21bを8.5g (0.0112モル)得た。収率28%。

#### 【0139】5-3. 例示化合物21の合成

化合物21b 3.30g (4.38ミリモル)、 $p$ -トルエンスルホン酸一水和物0.5g (2.63ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下7時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(v/v))にて精製した後、クロロホルム/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物21を2.02g (2.88ミリモル)得た。収率66%。融点:250℃

#### 【0140】合成例6. 例示化合物24の合成

##### 6-1. 化合物24aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン59.0g (0.347モル)、炭酸カリウム105g (0.760モル)、ヨウ化銅(I)9.40g (0.0494モル)、トル

エン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、8-アミノキノリン75.0g (0.520モル)を加えた。16時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物24aを27.0g (0.102モル)得た。収率29%

#### 【0141】6-2. 化合物24bの合成

化合物24a 25.0g (93.9ミリモル)をテトラヒドロフラン220ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム82.2g (0.472モル)/水420ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール70ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24.4g (0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド7.55g (28.4ミリモル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(v/v))にて精製することにより化合物24bを7.86g (9.09ミリモル)得た。収率32%。

#### 【0142】6-3. 例示化合物24の合成

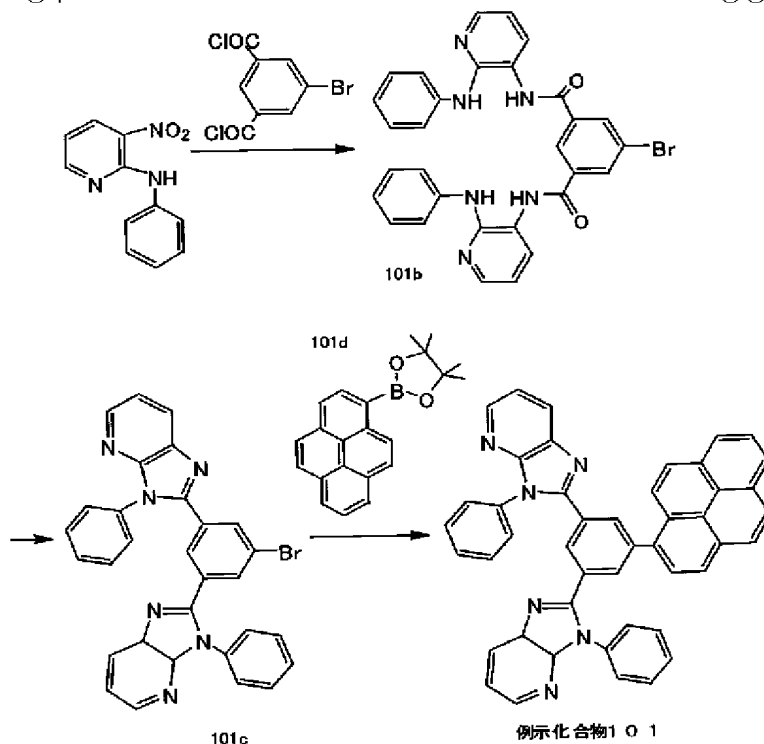
化合物24b 5.00g (5.78ミリモル)、 $p$ -トルエンスルホン酸一水和物0.5g (2.63ミリモル)にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲気下5時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(v/v))にて精製した後、クロロホルム/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物24を1.87g (2.31ミリモル)得た。収率40%。

融点:384℃

#### 【0143】合成例7.

##### 【0144】

##### 【化79】



【0145】7-1. 化合物101bの合成  
 化合物2a50.0g (0.232モル)をテトラヒドロフラン500ミリリットルに溶解させ、窒素雰囲気下、室温で撹拌しているところに、ハイドロサルファイトナトリウム200g (1.149モル)／水700ミリリットルの溶液を滴下した。更にメタノール20ミリリットルを加えて、1時間撹拌した。次に、酢酸エチル500ミリリットルを加えて、炭酸水素ナトリウム40g (0.476モル)／水400ミリリットルの溶液を加えた。更に5-ブロモイソフタロイルクロリド65.4g (0.232モル)／酢酸エチル150ミリリットルの溶液を滴下し、室温で5時間撹拌した。酢酸エチルで抽出し、水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)で精製した後、クロロホルム／ヘキサンで再結晶することにより化合物101bを29.6g (0.051モル)得た。収率22%。

【0146】7-2. 化合物101cの合成  
 化合物101b30g (0.05モル)をキシレン1リットルに溶解させ、p-トルエンスルホン酸一水和物4.7g (0.025モル)を加え、窒素雰囲気下、2時間加熱還流しながら共沸脱水を行った。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、エタノール／クロロホルムで再結晶することにより、化合物101cを16.3g (0.03モル)得た。収率58%。

【0147】7-3. 例示化合物101の合成  
 化合物101c500ミリigram (0.92ミリモル) \* 50

\*と化合物101d332ミリigram (1.01ミリモル)をエチレングリコールジメチルエーテル20ミリリットルおよび水10ミリリットルに懸濁させた。この懸濁液に炭酸ナトリウム214.5ミリigram (2.02ミリモル)、パラジウムカーボン15ミリigram、トリフェニルホスフィン12ミリigramを加え、2時間加熱還流した。加熱停止後、熱時濾過で触媒を除き、濾液を酢酸エチルで抽出後、硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒留去した。残渣をクロロホルムから再結晶し、例示化合物101を180ミリigram (0.27ミリモル)得た。収率29%。

【0148】次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0149】本発明の化合物を発光素子用材料として用いた場合、ホール注入・輸送層、電子注入・輸送層、発光層のいずれに用いてもよいが、電子注入・輸送層および／または発光層として用いることが好ましい。

【0150】本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の

材料を用いることができる。

【0151】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0152】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2 mm以上、好ましくは0.7 mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルーゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0153】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Cs等）またはそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）またはそのフッ化物、酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以

下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～1 μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着すること、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0154】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。発光層に用いる化合物としては励起一重項状態から発光するもの、励起三重項状態から発光するもののいずれでもよく、例えば本発明の化合物のほか、例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体、遷移金属錯体（例えば、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム（III）などのオルソメタル化錯体等）や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン、ポリフルオレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、LB法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0155】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から

注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポリフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、カーボン膜等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0156】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。好ましくは電子注入層及び/又は電子輸送層に本発明の化合物を含有するものであるが、本発明の化合物の他の材料を用いることもできる。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンベリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子と

する金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0157】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE(分子線エピタキシー)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などを適用できる。

【0158】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。実施例1. 洗浄したITO電極付きガラス基板上に、銅フタロシアニンを膜厚15 nm、N、N'-ビス(1-ナフチル)-N、N'-ジフェニルベンジジン(NPD)を膜厚40 nm、表1記載化合物を膜厚60 nmで、この順に真空蒸着(1.0×10<sup>-3</sup>～1.3×10<sup>-3</sup> Pa)した。この上にパターニングしたマスク(発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク)を設置し、マグネシウ

ム：銀＝10：1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着し（ $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$  Pa）、発光素子を作製した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、ITOを陽極、Mg：Agを陰極として直流定電圧を発光素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長、色度座標（CIE色度座標）を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定し\*

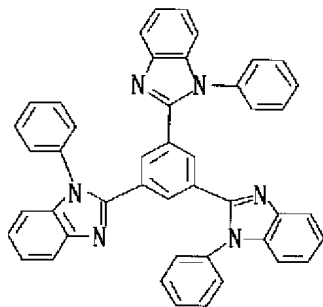
表1

試料 No.	化合物	発光波長 $\lambda_{\max}(\text{nm})$	最高輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	CIE色度座標 ( $x, y$ )	最低駆動 電圧(V)	経時後の 相対輝度	ダーク スポット 発生	備考
101	比較化合物1	460	410	(0.16, 0.15)	6	77	無	比較例
102	比較化合物2	445	230	(0.15, 0.15)	7	12	有	"
103	例示化合物2	465	1620	(0.16, 0.15)	4	82	無	本発明
104	例示化合物18	463	1777	(0.16, 0.16)	4	91	無	"
105	例示化合物19	447	1650	(0.16, 0.17)	4	88	無	"
106	例示化合物21	420	1820	(0.15, 0.13)	4	93	無	"
107	例示化合物24	432	1900	(0.15, 0.14)	4	94	無	"

【0160】

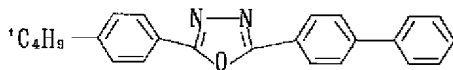
【化80】

比較化合物1



特開平10-92578号記載化合物

比較化合物2 (PBD)



\*た。また、作製した素子を85℃、70%RHの条件下に3日間放置後発光させた相対輝度（素子作製直後の輝度を100とした場合の経時後の輝度を相対値で表した値（駆動電圧10V））および発光面のダークスポット（未発光部）の有無を目視評価した。結果を表1に示す。

【0159】

【表1】

※【0161】表1の結果より、本発明の化合物を用いると非ドーブ型の素子でも高輝度で色純度良好な青色発光が可能であることがわかる。また、高温保管後の輝度低下、ダークスポットの発生も少なく耐久性に優れていることがわかる。

【0162】実施例2. 実施例1と同様にITO基板を洗浄後、銅フタロシアニンを膜厚5nm、NPDを膜厚40nm、青色発光材料Aを膜厚20nm、表2記載の化合物を膜厚40nmとなるようにこの順に真空蒸着（ $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$  Pa）した。この上にパターンニングしたマスク（発光面積が4mm×5mmとなるマスク）を設置し、マグネシウム：銀＝10：1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着し（ $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$  Pa）、発光素子を作製した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。作製した素子について実施例1と同様な評価を行った。結果を表2に示す。

40 【0163】

【表2】

※

表2

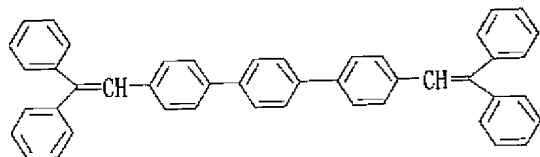
試料 No.	化合物	発光波長 $\lambda_{\max}(\text{nm})$	最高輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	CIE色度座標 ( $x, y$ )	最低駆動 電圧(V)	経時後の 相対輝度	ダーク スポット 発生	備考
201	比較化合物1	460	510	(0.15, 0.15)	6	79	無	比較例
202	比較化合物2	462	320	(0.15, 0.15)	7	19	有	"
203	例示化合物18	462	3040	(0.15, 0.15)	4	83	無	本発明
204	例示化合物19	462	2780	(0.15, 0.16)	4	92	無	"
205	例示化合物21	461	3820	(0.15, 0.14)	4	94	無	"
206	例示化合物24	462	4040	(0.15, 0.14)	4	98	無	"
207	例示化合物26	461	2650	(0.15, 0.15)	4	81	無	"
208	例示化合物81	464	2430	(0.15, 0.15)	4	80	無	"

比較化合物1、2は実施例1と同じ。

【0164】

【化81】

青色発光材料A



【0165】表2の結果より、本発明の化合物を用いると非ドーパ型の素子で電子輸送材として機能し、高輝度で色純度良好な青色発光が可能であることがわかる。また、高温保管後の輝度低下、ダークスポットの発生も少なく耐久性に優れていることがわかる。

【0166】実施例3. 実施例1と同様にITO基板を洗浄後、銅フクロシアニンを膜厚5nm、NPDを膜厚\*  
表3

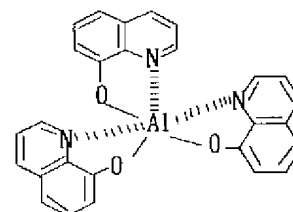
試料 No.	化合物	最高輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )		CIE色度座標 ( $x, y$ )		備考
		8V駆動時	15V駆動時	8V駆動時	15V駆動時	
301	比較化合物3	475	2250	(0.15, 0.15)	(0.17, 0.25)	比較例
302	例示化合物5	920	2890	(0.15, 0.15)	(0.15, 0.16)	本発明
303	例示化合物18	1040	3130	(0.15, 0.15)	(0.15, 0.16)	"
304	例示化合物27	860	2840	(0.15, 0.15)	(0.15, 0.15)	"
305	例示化合物82	740	2600	(0.15, 0.15)	(0.15, 0.16)	"

【0168】

【化82】

※

※ 比較化合物3 (Alq)



化合物を用いた素子では、蛍光性化合物をドーピングした系でも高輝度発光が可能であることが判る。またAlqをホストに用いた素子では駆動電圧を高くすると青色純度が低下するのに対し、本発明の化合物をホストに用いた素子では色純度の変化が殆ど見られず、色純度の高い高輝度発光が可能であることが判る。

【0170】実施例4．ポリ（N-ビニルカルバゾール）40mg、青色発光材料B10．0mg、緑色発光材料G2．0mg、赤色発光材料R0．5mg、表4記載の化合物12．0mgを1，2-ジクロロエタン3m×10

表4

試料 No.	化合物	最低駆動 電圧(V)	最高輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	CIE色度座標 (x, y)	ダーク スポット 発生	備考
401	比較化合物2	14	425	(0.32, 0.35)	有	比較例
402	例示化合物3	9	3030	(0.34, 0.35)	無	本発明
403	例示化合物4	9	2760	(0.34, 0.36)	無	〃
404	例示化合物5	8	3270	(0.33, 0.36)	無	〃
405	例示化合物18	8	4150	(0.33, 0.36)	無	〃
406	例示化合物27	9	3050	(0.34, 0.35)	無	〃

比較化合物は実施例1と同じ。

【0172】

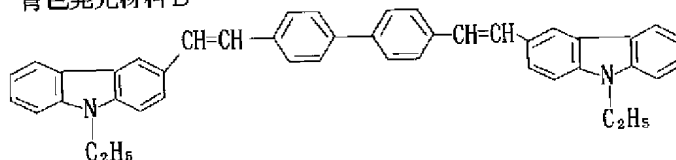
※ ※【化83】

\*1に溶解し、洗浄したITO基板上にスピンコートした。生成した有機薄膜の膜厚は、約110nmであった。有機薄膜上にパターニングしたマスク（発光面積が4mm×5mmとなるマスク）を設置し、次いでAl：Li=100：2比で膜厚200nmとなるように共蒸着して発光素子を作製した。この素子を実施例1と同様な方法で評価した。結果を表4に示す。

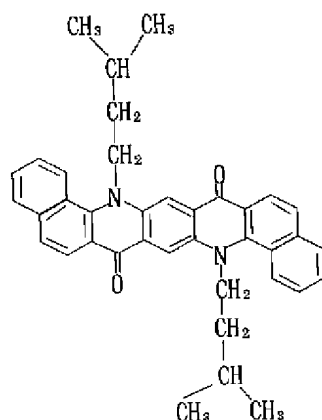
【0171】

【表4】

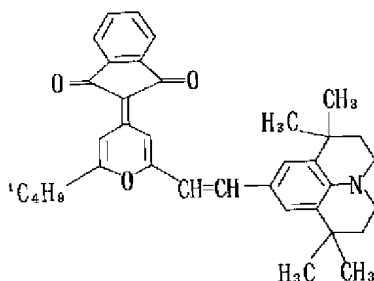
青色発光材料B



緑色発光材料G



赤色発光材料R



【0173】表4の結果から明かなように、本発明の化合物を用いた素子では、比較化合物に比べ、通常発光輝度が低い塗布方式においても低電圧駆動、高輝度発光が可能であることが判る。また、比較化合物2 (PBD)を用いた素子ではダークスポットの発生が顕著に見られるのに対し、本発明の素子では良好な面状発光を示した。更に、本発明の化合物を用いて青色、緑色および赤色発光材料を組み合わせると良好な白色発光が可能なが判る。

【0174】実施例5. 実施例1と同様にITO基板を洗浄後、NPDを膜厚50nm、4,4'-ビス(カルバゾール-9-イル)ビフェニルおよびトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(III)をそれぞれ蒸着速度0.4nm/秒、0.025nm/秒で膜厚20nmとなるように共蒸着し、次いで例示化合物21を膜厚25nm蒸着し、更にLiFを膜厚1nm蒸着(1.0×10<sup>-3</sup>~1.3×10<sup>-3</sup>Pa)した。この上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、アルミニウムを200nm蒸着(1.0×10<sup>-3</sup>~1.3×10<sup>-3</sup>Pa)して素子を作製した。

作製した素子について評価した結果、緑色で最高輝度98,000cd/m<sup>2</sup>、外部量子効率14%の高輝度、高効率発光が得られた。

【0175】実施例6. 実施例1と同様にITO基板を洗浄した後、Baytron P (PEDOT-PSS溶液(ポリジオキシエチレン-ポリスチレンスルホン酸ドープ体)/バイエル社製)を2000rpm、60秒でスピンコートした後、100℃で1時間真空乾燥し、ホール輸送性膜を作製した(膜厚約100nm)。この上にポリ(9,9-ジオクチルフルオレン)20mgをクロロホルム2ミリリットルに溶かした溶液をスピンコート(1000rpm、20秒)した(膜厚約70nm)。この上に例示化合物18を膜厚30nm真空蒸着(1.0×10<sup>-3</sup>~1.3×10<sup>-3</sup>Pa)した。次いでこの有機薄膜上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、実施例1と同様にして陰極を蒸着し、素子を作製した(本発明素子)。また、比較素子として上記素子作製工程において

## 101

例示化合物18を除いた素子を作製した。両素子についてEL特性を評価した結果、比較素子では最高輝度93 cd/m<sup>2</sup>、外部量子効率0.1%以下であったのに対し、本発明素子では最高輝度1680 cd/m<sup>2</sup>、外部量子効率1.3%となり、 $\pi$ 共役系ポリマーを発光材料として用いた場合にも本発明化合物が電子輸送材料として有効に機能することが明らかとなった。

【0176】実施例7. 実施例1と同様にITO基板を洗浄した後、Baytron P (PEDOT-PSS 溶液 (ポリジオキシエチレン-ポリスチレンスルホン酸 ドープ体) / バイエル社製) を2000 rpm、60秒でスピコートした後、100°Cで2時間真空乾燥し、ホール輸送性膜を作製した (膜厚約100 nm)。この上にポリ (N-ビニルカルバゾール) 40 mg、PBD 12 mg およびトリス (2-フェニルピリジン) イリジウム (III) 1 mg をクロロホルム3ミリリットルに溶解した溶液をスピコート (1500 rpm、20秒) した (膜厚約80 nm)。この上に例示化合物21を膜厚20 nm真空蒸着 ( $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$  Pa) し、更にLiFを膜厚約1 nm蒸着 ( $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$  Pa) した。この上にパター

## 102

ニングしたマスク (発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク) を設置し、アルミニウムを200 nm蒸着 ( $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$  Pa) して素子を作製した (本発明素子)。また、比較素子として上記素子作製工程において例示化合物21を除いた素子を作製した。作製した素子について評価した結果、比較素子では発光輝度1000 cd/m<sup>2</sup>の時の外部量子効率が5.2%であったのに対し、本発明素子では外部量子効率10.2%となり、三重項励起子からの発光と言われているトリス (2-フェニルピリジン) イリジウム (III) を用いた塗布型素子においても、本発明化合物が電子輸送材料として有効に機能することが明らかとなった。

## 【0177】

【発明の効果】本発明の化合物により、ドープ型および非ドープ型素子のいずれにおいても色純度良好な高輝度青色発光素子の作製が可能となり、また広範囲の波長域に発光可能な素子が提供できる。また、通常輝度の低い塗布方式でも良好な発光特性が得られ、製造コスト面で有利な素子作製が可能である。更に、耐久性が良好で、駆動電圧の違いによる色度変化も小さい有機発光素子が得られる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード <sup>1</sup> (参考)
C 07 D 519/00	3 1 1	C 07 D 519/00	3 1 1
C 07 F 7/08		C 07 F 7/08	R
7/30		7/30	F
H 05 B 33/14		H 05 B 33/14	B
33/22		33/22	B
// C 08 F 12/26		C 08 F 12/26	
226/06		226/06	

F ターム (参考) 3K007 AB01 AB12 AB17 AB18 CA01  
CB01 CB03  
4C072 MM02 MM03 MM10 UU05  
4H049 VN01 VN02 VP01 VQ60 VQ84  
VR24 VU29 VW01  
4J100 AB07P AQ26Q BC43P BC65Q  
BC73P BD15P CA01 CA04  
DA01 JA32

**PAT-NO:** JP02001335776A  
**DOCUMENT-IDENTIFIER:** JP 2001335776 A  
**TITLE:** NOVEL HETEROCYCLIC  
COMPOUND, LIGHT-EMITTING  
ELEMENT MATERIAL AND LIGHT-  
EMITTING ELEMENT USING THIS  
MATERIAL  
**PUBN-DATE:** December 4, 2001

**INVENTOR-INFORMATION:**

NAME	COUNTRY
OKADA, HISASHI	N/A
ISE, TOSHIHIRO	N/A

**ASSIGNEE-INFORMATION:**

NAME	COUNTRY
FUJI PHOTO FILM CO LTD	N/A

**APPL-NO:** JP2000218967

**APPL-DATE:** July 19, 2000

**PRIORITY-DATA:** 11207957 (July 22, 1999) , 2000080734 (March 22, 2000)

**INT-CL (IPC):** C09K011/06 , C07D519/00 , C07F007/08 ,  
C07F007/30 , H05B033/14 , H05B033/22 ,  
C08F012/26 , C08F226/06

**ABSTRACT:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a light-emitting element material excellent in color purity, good in light emission character, and excellent in stability during repeated use, and a light-emitting element.

SOLUTION: This light-emitting element material is a compound represented by general formula (I)  $L-(A)_m$  (wherein A represents a heterocyclic group formed by condensation of two or more aromatic hetero rings, the heterocyclic group represented by A in  $(A)_m$  may be the same or different. (m) represents an integer of 2 or larger, and L represents a connecting group.), and the light-emitting element uses this material.

COPYRIGHT: (C)2001,JPO